Paris 1972

ORSAY
Série A
N° d'Ordre : 961

Sujet de la thèse :

ETUDE DU FLUAGE EN CONDITIONS ISOTHERMES ET ANISOTHERMES DE L'URANIUM MONOCRISTALLIN ET POLYCRISTALLIN ET DE SES CONSEQUENCES SUR L'APPARITION DE LA SUPERDUCTILITE.

Article principal

recouvrant en partie la thèse de Doctorat es Sciences Physiques

enregistrée au C.N.R.S. sous le Numéro A.O. 7173

COLLOT Jean
Ingénieur I.N.S.A. de Lyon (Génie Physique)

Soutenue le 1er juin 1972 à la Faculté des SCIENCES D'ORSAY

devant le jury :

MM. Président : A. MICHEL
Examinateurs : P. LACOMBE
G. CIZERON
P. LEHR
M. WEISZ

LES MÉMOIRES SCIENTIFIQUES
DE LA
REVUE DE MÉTALLURGIE

Extrait du T. LXVII, n° 7/8, juillet-août 1970, pp. 519-539

Comportement de l'uranium α soumis à une faible charge durant le processus de recristallisation ou pendant la transformation allotropique α/β

par J. COLLOT, G. CIZÉRON et P. LACOMBE

Éditions de la REVUE DE MÉTALLURGIE
47, Rue Boissière, PARIS (XVI[e])

1970

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550019_0009

Comportement de l'uranium α soumis à une faible charge durant le processus de recristallisation ou pendant la transformation allotropique α/β (*)

par J. COLLOT, G. CIZERON et P. LACOMBE (**)

Résumé

Cette étude a été effectuée à l'aide d'une micromachine de fluage sous vide précédemment décrite, qui présente en outre l'avantage de pouvoir être utilisée en tant que dilatomètre sous charge.

Au préalable, les deux principaux paramètres susceptibles d'influer sur les courbes dilatométriques enregistrées sous charge, ont été étudiés systématiquement : vitesse de montée en température et valeur de la charge appliquée. Ceci a ensuite permis d'analyser les phénomènes associés à la recristallisation de l'uranium de pureté électrolytique ayant subi au préalable des taux de réduction divers par laminage unidirectionnel (33-60-80 et 90 %); *dans ces expériences, la vitesse de chauffe a été fixée à* 20 °C/h *et la charge appliquée était uniformément de* 14,8 N/mm². *Les diverses courbes obtenues mettent en évidence de nettes variations de pente correspondant à des évolutions structurales successives; ces faits ont été interprétés comme traduisant le développement transitoire d'une superductilité essentiellement liée à l'existence d'une structure mixte : grains très fins dispersés au sein d'une matrice restaurée.*

Dans la seconde partie de ce travail, l'effet de contraintes de tension appliquées pendant la transformation allotropique $\alpha \rightleftarrows \beta$ *a été plus particulièrement considéré; ces contraintes variant de* 1 *à* 16 N/mm². *L'amplitude des anomalies dilatométriques associées au changement de phase a été mesurée au cours de cycles successifs; l'augmentation de la contrainte appliquée entraîne un accroissement progressif de l'anomalie expansionnelle liée au passage* $\alpha \rightarrow \beta$; *par contre, la contraction associée à la transformation inverse* $\beta \rightarrow \alpha$, *encore observable pour des valeurs faibles de la contrainte appliquée, s'annule lorsque cette dernière devient de l'ordre de* 7 *à* 9 N/mm², *puis se transforme en une dilatation pour des valeurs supérieures. Les examens micrographiques effectués parallèlement ont principalement montré qu'après un cycle* $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ *les éprouvettes sont polycristallines si la charge appliquée est suffisamment importante; par contre pour de faibles contraintes* ($\sim$ 1 N/mm²) *de gros cristaux polygonisés se développent (dont la surface est de l'ordre de* 5 mm²). *L'interprétation de ces résultats nous a enfin conduits à proposer un modèle susceptible de traduire les phénomènes développés lors de la transformation allotropique* $\alpha \rightarrow \beta$ *de l'uranium.*

(*) Communication présentée aux Journées d'Automne de la Société Française de Métallurgie. Paris (octobre 1969). Manuscrit reçu le 27 mars 1970.

(**) Centre de Recherches Métallurgiques de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris. Laboratoire associé au C.N.R.S. n° 78.

INTRODUCTION

Les étapes de la recristallisation de l'uranium α ont déjà été étudiées par mesure de dureté (2) (3) (4) (5) (6) (7) (8), de résistivité (3) 4) (7) (8), par rayons X (2) (3) (9) et par microscopie électronique (2).

Cependant, il nous a paru intéressant de considérer à nouveau ce problème d'une toute autre manière en utilisant la dilatométrie sous charge. Dans ce but, nous avons utilisé une machine de fluage sous vide, décrite dans une publication antérieure (1), dont une des possibilités est qu'elle peut fonctionner en tant que dilatomètre sous charge. A partir des courbes dilatométriques enregistrées sous différentes charges et à différentes vitesses de montée en température, deux problèmes bien différents ont été successivement considérés :

— Dans une première série d'expériences, nous avons suivi les différentes étapes de la recristallisation de l'uranium α écroui sollicité sous contrainte de tension modérée pendant le processus.

— Dans une deuxième série d'expériences, nous avons considéré l'effet exercé par des contraintes similaires appliquées pendant la transformation allotropique $\alpha \rightarrow \beta$ et $\beta \rightarrow \alpha$.

Description de la méthode utilisée.

Les éprouvettes utilisées, de section rectangulaire égale à 3 mm² (1), ont été découpées par matriçage dans des tôles.

Dès le début de chaque expérience, l'éprouvette a été mise sous charge à la température ambiante. Dans ces conditions (T = 20 °C) et si la charge est élevée (soit de l'ordre de 171 N/mm²) on enregistre alors un fluage du type logarithmique.

Cette température de 20 °C est inférieure à 0,25 T_F °K = 33 °C (T_F étant la température de fusion théorique de la phase α). Il suffit alors d'attendre que la vitesse de fluage s'annule pour commencer à élever la température de l'éprouvette.

Si par contre la charge appliquée est faible, aucun allongement n'est observé lors de la mise en charge à 20 °C et l'essai peut être commencé aussitôt la mise en charge effectuée.

Ces conditions étant vérifiées, l'éprouvette est ensuite chauffée à vitesse donnée soit 20 ou 2 °C/h ; on enregistre alors simultanément les trois variables : température, temps, allongement.

ÉTUDE DE LA RECRISTALLISATION DE L'URANIUM ÉCROUI PAR DILATOMÉTRIE SOUS CHARGE

Justification du mode opératoire utilisé.

Le but cherché était de mettre en évidence d'éventuelles anomalies sur la courbe de fluage lorsque se développent les modifications structurales associées à la recristallisation. A cette fin, deux types d'essais pouvaient être envisagés à partir du métal écroui :

— mise en température aussi rapide que possible en l'absence de charge puis enregistrement isotherme du fluage sous charge de l'éprouvette ; de telles expériences ont déjà été tentées sur le plomb par Gifkins (10) ;

— enregistrement des variations dimensionnelles de l'éprouvette sollicitée sous une charge constante et chauffée progressivement : soit un essai de fluage anisotherme sous charge invariante. Cette deuxième méthode présente en outre l'avantage de mettre en évidence l'apparition éventuelle d'une superductilité ; à ce titre, il est bon de rappeler que des observations antérieures (11) (12) (13), effectuées par essai de traction sur de l'uranium ayant subi un recuit partiel, ont déjà permis de noter un accroissement notable de la plasticité du métal.

La figure 1 montre un exemple des résultats obtenus pour le premier type d'essai ; pour accroître la vitesse de montée en température le four a été chauffé au préalable à la température visée et abaissé rapidement sur l'enceinte à vide contenant l'éprouvette. Cependant, l'inertie thermique du montage est telle que pour atteindre la température d'essai isotherme, une durée de 45 mn s'est révélée nécessaire. Les conditions opératoires retenues :

— uranium écroui de 90 % par laminage ;

— température de maintien isotherme égale à 375 °C, avaient été choisies pratiquement identiques à celles utilisées précédemment par Ferran et Cizeron (4) pour étudier l'évolution structurale de l'uranium par mesure de dureté en fonction du temps de maintien isotherme. Seul un facteur supplémentaire était introduit dans l'expérience représentée sur la figure 1 : une contrainte constante égale à 14,8 N/mm² étant appliquée à l'éprouvette durant le traitement isotherme.

Les auteurs précités (4) avaient mis en évidence, par maintien isotherme à 375 °C, trois chutes successives de dureté ;

— première diminution de dureté (entre 1 et 5 mn) traduisant la restauration de la matrice écrouie de départ ;

— seconde diminution (entre 5 mn et 22 mn : c'est-à-dire entre les points A et B) : formation d'une structure

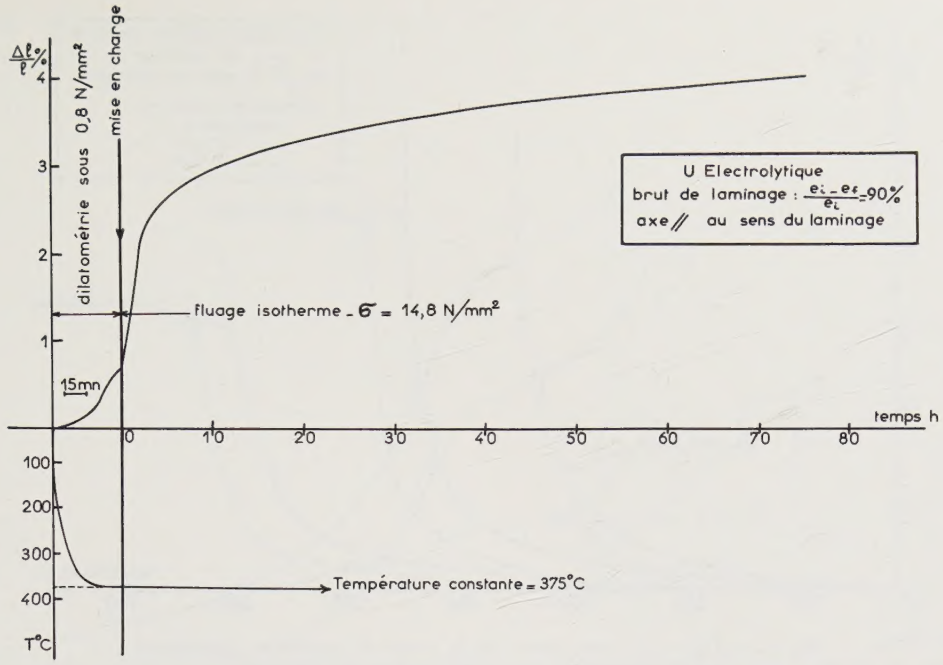


Fig. 1. — *Essai de fluage isotherme à* 375 °C *sur l'uranium écroui après mise en température rapide.*

duplex constituée de petits cristaux, de taille voisine de 1 μ, dispersés au sein de la matrice restaurée. Au terme de cet intervalle de temps (point B) la structure était entièrement formée des petits cristaux ;

— troisième diminution de dureté (entre 22 mn et 8 h 20 : c'est-à-dire entre les points B et C) : formation d'une seconde structure duplex constituée de cristaux de taille moyenne égale à 5 μ dispersés au sein de la matrice à grains fins (1 μ). Au terme de ce dernier intervalle de temps (point C), la structure était entièrement formée de cristaux de taille égale à 5 μ.

L'essai de fluage isotherme reproduit sur la figure 1 montre qu'il n'a pas été possible de mettre en évidence les anomalies évoquées ci-dessus ; en fait la courbe de fluage isotherme enregistrée entre 45 mn et 80 h est tout-à-fait monotone. Ce résultat nous a donc conduits à mettre en œuvre le second type d'essais consistant à appliquer la charge à l'éprouvette dès la température ambiante et à enregistrer les variations dimensionnelles en fonction de la température : ce mode opératoire correspond bien à un essai de dilatométrie sous charge.

Influence de divers paramètres

En raison des quantités limitées d'uranium purifié mis à notre disposition, nous avons tout d'abord tenté, à partir d'uranium de pureté nucléaire courante :

Ag < 0,5 ; Al < 20 ; B 0,1 ; Cr 6 ; Cu < 5; Mg < 10; Mn 4 ; Na < 5 ; Ni 50 ; P < 50 ; Pb < 3 ; Si 22 ; Fe 33 ; C 94 ; K < 20 ; Li < 2 ; Cd < 0,5 ; Co < 2 ; Mo 20 (teneurs en 10^{-6}),

de déterminer l'influence des deux paramètres suivants :

— vitesse de montée en température ;

— valeur de la charge appliquée.

Les éprouvettes de fluage ont été prélevées dans une tôle de cet uranium, parallèlement à l'axe de laminage ; cette tôle résultait elle-même des processus de mise en forme décrits ci-après :

— laminage à chaud d'un lingot jusqu'à une épaisseur finale de 2,7 mm ;

— recuit en bain de sel à 600 °C ;

— laminages successifs à 20 °C, avec recuits intermédiaires à 600 °C (sous vide) d'une durée unitaire de 1 h. Les épaisseurs successives obtenues ont respectivement été de : 2,2 - 1,8 - 1,45 - 1,15 - 1 mm. Le taux final de laminage n'était donc que de 13 %.

Effet exercé par la vitesse de montée en température.

La figure 2, relative aux essais effectués sur cet uranium technique, montre qu'à charge constante donnée, une vitesse croissante de montée en température a pour effet de réduire l'allongement observé. Ce résultat était somme toute prévisible, puisqu'à une vitesse lente le temps mis pour franchir un intervalle donné de température est plus important que dans le cas d'une vitesse rapide ; ceci entraîne donc, pour une même charge, un fluage plus important.

Effet exercé par la valeur de la contrainte appliquée.

La figure 2 montre également que la vitesse de fluage devient trop élevée, même aux basses températures, si la contrainte appliquée est trop importante. Par suite, si l'on veut explorer tout le domaine de températures

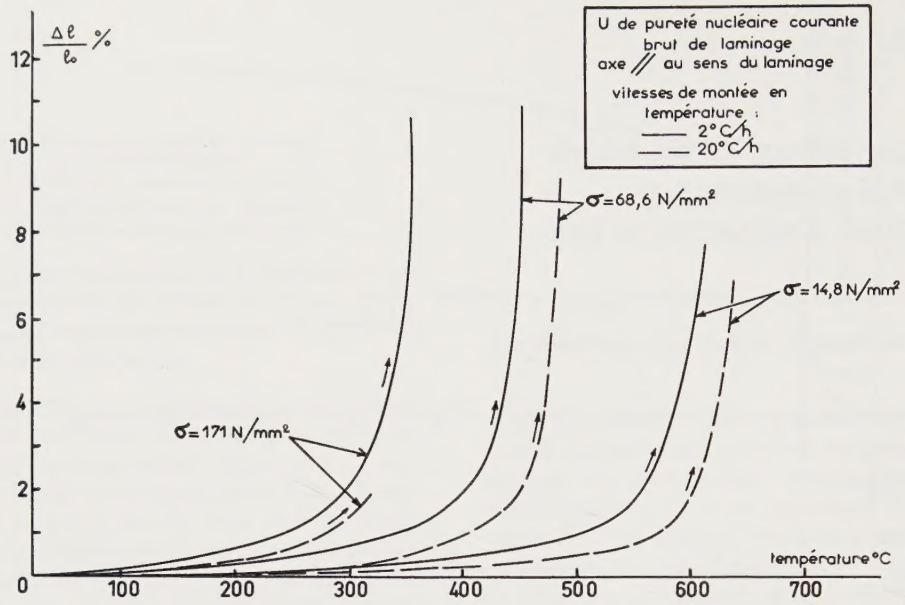


Fig. 2. — *Effet de la contrainte et de la vitesse de montée en température sur la dilatométrie sous charge d'uranium technique.*

où la phase α est stable, il convient d'utiliser une contrainte inférieure à 15 N/mm². Dans de telles conditions, on n'observe pas non plus de rupture précoce.

Nous avons par ailleurs vérifié que l'effet exercé par la valeur de la contrainte appliquée était similaire pour l'uranium d'origine électrolytique. Nous avons toutefois observé qu'à contrainte égale le fluage anisotherme débute environ 100 °C plus bas avec l'uranium d'origine électrolytique que dans le cas de l'uranium technique.

Pour la suite de l'étude, nous avons donc retenu les conditions opératoires suivantes :

— contrainte uniaxiale de 14,8 N/mm² ;

— vitesse de montée en température égale à 20 °C/h ;

— uranium utilisé de pureté électrolytique :

Al $\leqslant$ 20 ; C : 14 ; P $\leqslant$ 50 ; Fe : 10 ; Cu : 10 ; Cr $<$ 4; K $<$ 20 ; Si : 12 ; Mg $\leqslant$ 20 ; Na $\leqslant$ 5 ; Ni $<$ 4 ; Li $<$ 2 ; Pb $<$ 3; Mn $<$ 1 ; Cd $<$ 0,5 ; Ag $<$ 0,5 ; B : 0,1 ; O : 7 (teneurs en 10^{-6}).

Cet uranium a été écroui par laminage à 20 °C à des taux variant de 33 à 90 % ; ce type de matériau était en effet plus intéressant à considérer du fait qu'il permet d'observer une évolution plus progressive et plus complexe avant recristallisation complète que dans le cas de l'uranium technique (ce dernier ne commençant à recristalliser qu'au-delà de 400 °C (3)).

Mise en évidence des différentes étapes de l'évolution structurale du matériau.

La courbe A de la figure 3 montre un exemple des résultats obtenus dans le cas d'un métal préalablement laminé à un taux de 60 %. Cette courbe a été obtenue à partir d'une éprouvette prélevée parallèlement à la direction de laminage, sollicitée en tension uniaxiale sous une contrainte de 14,8 N/mm². Elle peut être divisée en quatre parties :

— de 20 à 200 °C les variations dimensionnelles sont sensiblement linéaires en fonction de la température croissante ;

— de 200 à 400 °C, on observe un fluage dont l'importance va croissant ;

— entre 400 et 450 °C il se produit une nette diminution de la vitesse d'allongement ;

— entre 450 et 550 °C, on note à nouveau une réaccélération notable de la vitesse de déformation, avec striction éventuelle avant la température de changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$;

Dans le but de faire la part du phénomène induit par la charge appliquée et ainsi dégager l'effet propre de la dilatation thermique, nous avons enregistré, sur une autre éprouvette, la courbe B sous une contrainte de 0,775 N/mm², l'appareil fonctionnant en dilatomètre sous charge minimale, laquelle est alors représentée par le poids de la mordache inférieure, des tiges de silice et du noyau du capteur (1).

La courbe A-B représente la différence entre l'allongement global (courbe A) et l'allongement dilatométrique (courbe B). De la sorte, on peut conclure que les anomalies observées sont en fait liées essentiellement aux variations structurales dont le matériau est le siège entre 200 et 600 °C.

La figure 4 montre la bonne reproductibilité des résultats obtenus. Les trois courbes a, b, c, sont relatives à trois essais similaires effectués à partir de trois éprouvettes distinctes. Ces trois essais ont été respectivement interrompus à des températures situées dans chacun des trois domaines dans lesquels la vitesse de fluage présente des variations inhabituelles, soit : 324, 443 et

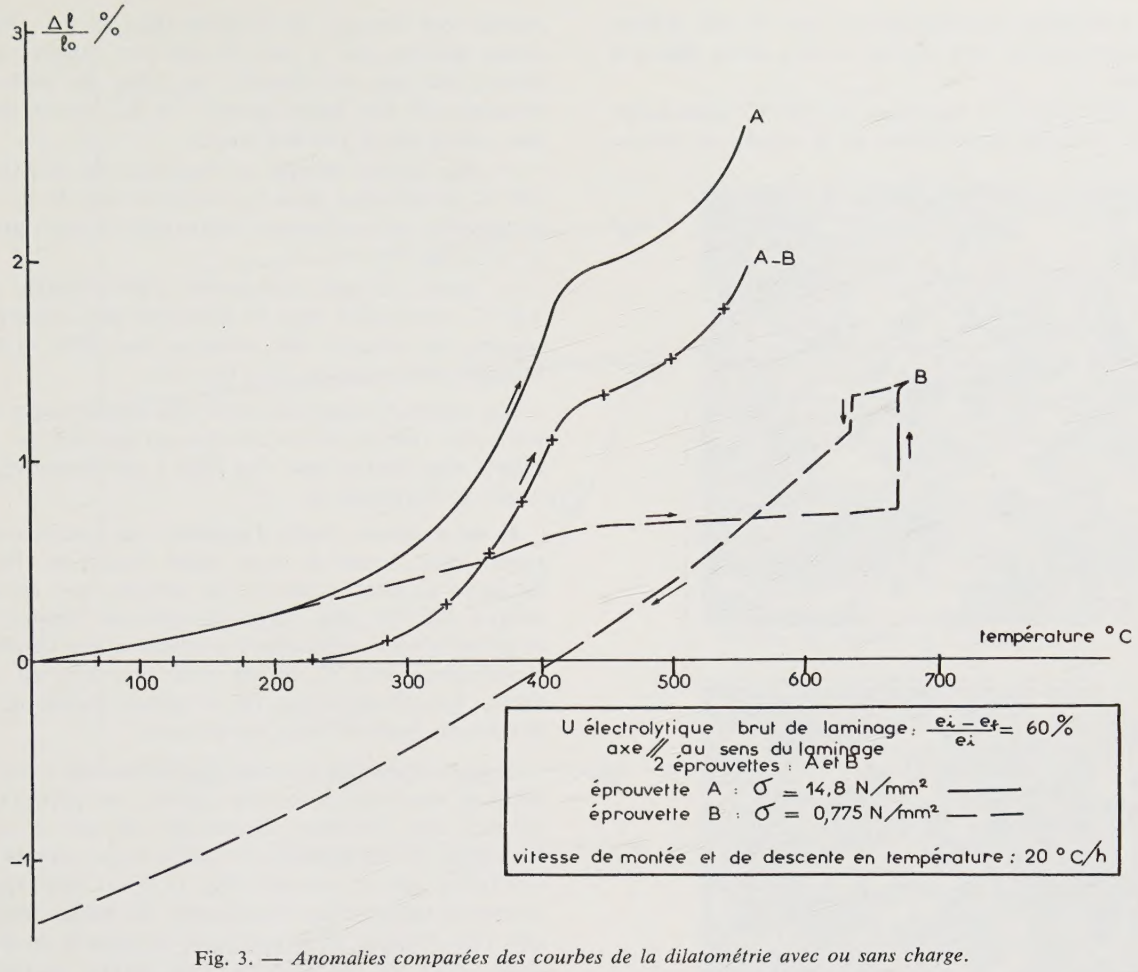


Fig. 3. — *Anomalies comparées des courbes de la dilatométrie avec ou sans charge.*

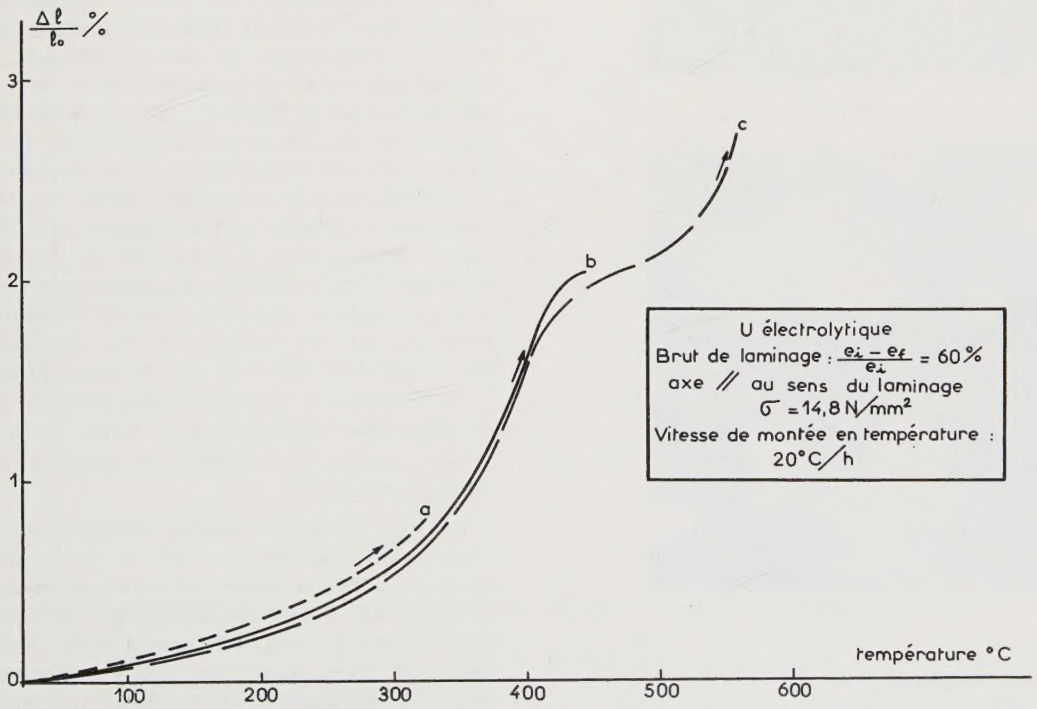
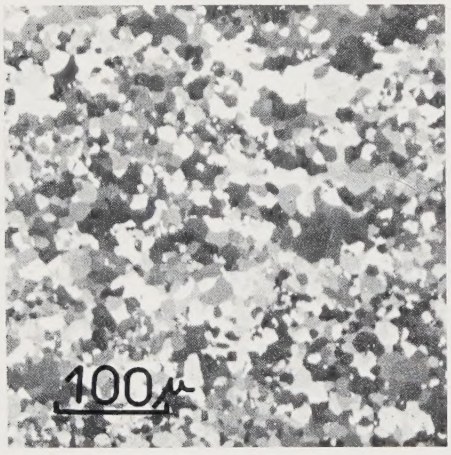


Fig. 4. — *Mise en évidence de la reproductibilité des résultats de dilatométrie sous charge.*

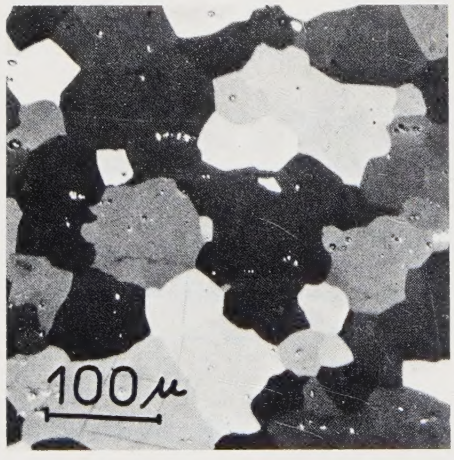
640 °C. L'examen micrographique (fig. 5) des échantillons correspondant aux repères a, b, c de la figure 6 révèle que :

— Si l'on arrête le chauffage à 324 °C (c'est-à-dire lors de la première accélération de la courbe de dilatométrie sous charge), la structure (fig. 5a) est constituée d'une matrice qui a peu évolué par rapport à l'état écroui, au sein de laquelle on note par endroits la présence de très petits grains : on se trouve donc au tout début de la recristallisation.

a)



b)



c)

Fig. 5. — *Structures obtenues en trempant à partir des points* a, b, c *de la figure* 6.
U *électrolytique brut de laminage* $e_i - e_f/e_i = 60$ %.
$\sigma = 14{,}8$ N/mm²; *montée en température à* 20 °C/h.
a) T = 324 °C ; b) T = 443 °C c) T = 640 °C.

— Par contre, lorsque le chauffage est interrompu à 443 °C, c'est-à-dire dans le ralentissement de la courbe, le matériau est entièrement recristallisé à petits grains de ∅ 15 µ (fig. 5b).

— Enfin, lorsque l'éprouvette a été chauffée jusqu'à 640 °C, c'est-à-dire dans la deuxième accélération de la courbe, on observe des cristaux bien plus gros dont la taille peut atteindre 50 µ (fig. 5*c*).

Ces résultats confirment donc que les anomalies dimensionnelles visibles sur les courbes enregistrées par dilatométrie sous charge sont bien liées à une évolution structurale de l'uranium α.

Il est d'ailleurs facile d'apporter des preuves supplémentaires à l'appui de cette même hypothèse. En effet, la figure 6 montre que si on chauffe une éprouvette jusqu'à 443 °C, puis qu'on la refroidit jusqu'à 20 °C et qu'enfin on la réchauffe à nouveau à une température supérieure à 443 °C, on ne note plus lors du second cycle, qu'une variation de longueur faible et quasi linéaire en fonction de la température.

Il faut cependant préciser que ce second cycle a été effectué sous une contrainte faible ; on pourrait donc objecter que l'absence d'anomalie est due à ce fait. En réalité, si on effectue ce second cycle sous la même contrainte que le premier (fig. 7) il est clair que l'on n'observe toujours pas d'anomalie, du moins jusqu'à ce que l'on atteigne la température à laquelle le premier cycle avait été interrompu. Par contre, quand cette température est dépassée, les anomalies déjà notées aux plus hautes températures se développent alors. Sur la figure 7 l'expérience a été répétée successivement deux fois (les deux arrêts du chauffage se situant à 370 °C et 447 °C). Nous avons par ailleurs examiné la structure micrographique de l'éprouvette ayant servi aux essais représentés par la figure 7, après l'avoir refroidie successivement depuis les points A, B et C. Les trois états structuraux correspondants sont les suivants :

— *Structure A* : structure mixte constituée d'une matrice restaurée au sein de laquelle sont réparties des plages recristallisées à grains fins ∅ 3 µ (sous forme de bandes). La proportion de petits grains est toutefois bien plus notable que dans le cas de la figure 5*a* précédente (ce fait peut être relié au taux de déformation ici plus important : 90 % au lieu de 60 % précédemment).

— *Structure B* : recristallisation uniforme à grains fins de dimension moyenne égale à 15 µ.

— *Structure C* : les grains ont atteint alors une taille de 35 µ environ.

Les expériences précédentes effectuées sur éprouvettes extraites de tôles écrouies soit à 60 %, soit à 90 %, révèlent clairement l'influence qu'exerce le taux de laminage sur l'évolution du processus : non seulement la recristallisation à très petits grains se développe de façon différente, mais encore les allongements atteints pour une même température et une même contrainte appliquée semblent être beaucoup plus notables lorsque le taux de laminage a été élevé ; pour cette raison nous avons été

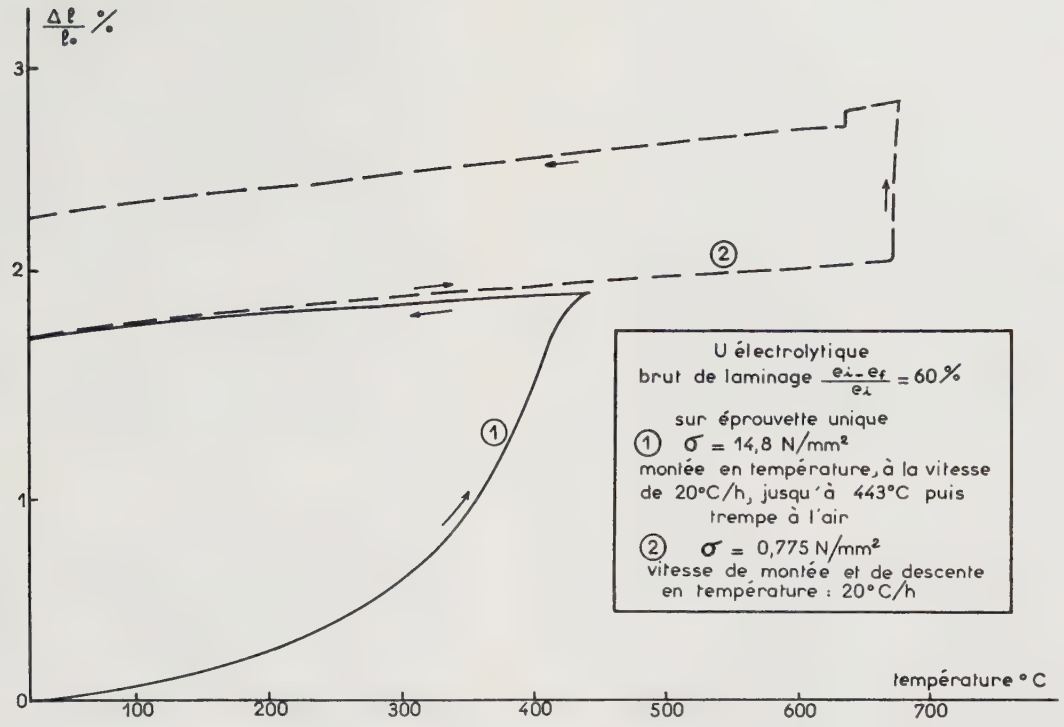


Fig. 6. — *Etude du premier palier de la courbe par dilatométrie avec charge* (courbe 1) *puis sans charge* (courbe 2).

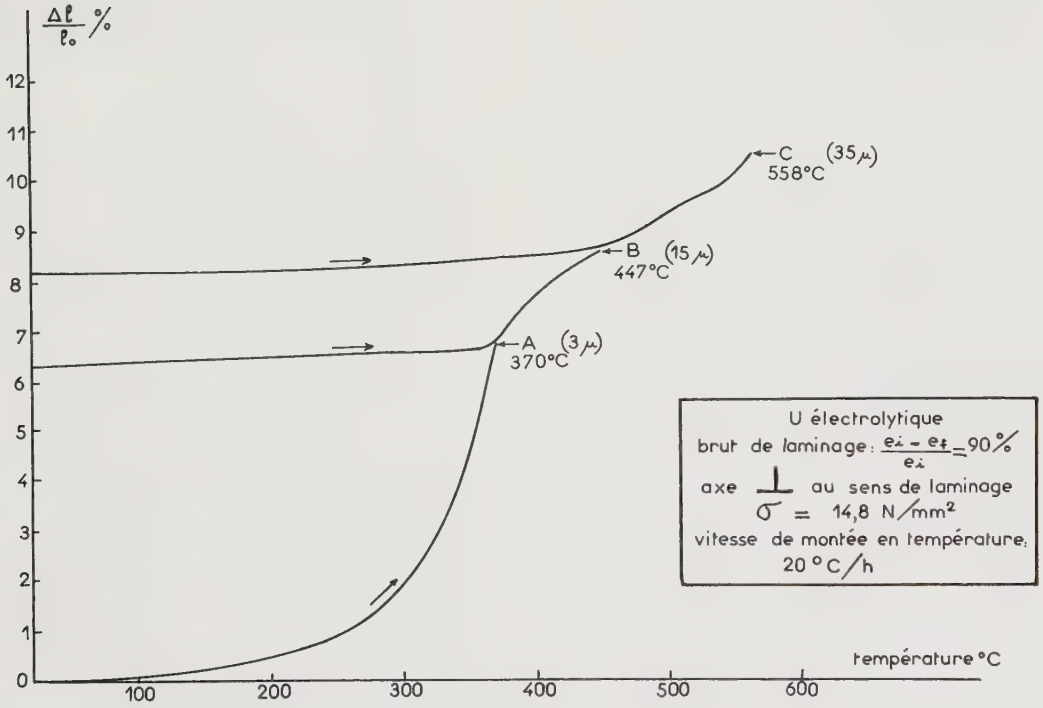


Fig. 7. — *Etude des différentes étapes de la courbe de dilatométrie sous charge (ou de fluage anisotherme).*

conduits à étudier de façon plus approfondie l'influence du taux de laminage sur l'allure de la courbe obtenue par dilatométrie sous charge.

Influence du taux de laminage retenu pour élaborer la tôle initiale.

L'uranium d'origine électrolytique a été successivement laminé à des taux différents : 33, 60, 80 et 90 %. Les essais effectués à partir d'éprouvettes prélevées dans ces différentes tôles sont rassemblés dans la figure 8. On constate que plus le taux de déformation a été faible, plus sont retardés la fin de la recristallisation à grains de 3 μ et le début de celle à grains de 15 μ (courbes pointillées définissant respectivement le début d'apparition des grains de taille égale à 3 μ ou 15 μ). Par contre, plus le taux de déformation a été important, plus la plasticité liée à l'existence d'une structure mixte est importante. L'examen micrographique confirme bien qu'à 400 °C les proportions de zones restaurées et de zones recristallisées à grains fins de 3 μ sont d'environ 50 % pour des taux de laminage de 90 % et de 80 %. Cette proportion est nettement plus faible pour des taux de laminage de 33 % et de 60 % : dans ce dernier cas, la proportion de la matrice recristallisée n'est que 10 % de l'ensemble.

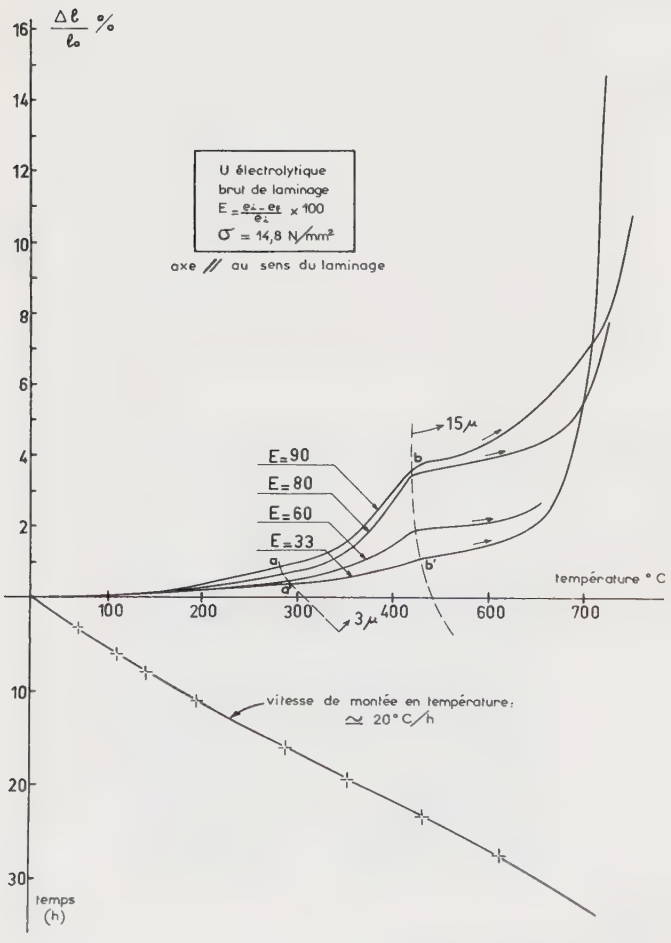


Fig. 8. — *Dilatométrie sous charge d'uranium électrolytique ayant subi avant l'essai différents taux de laminage* E (33 %, 60 %, 80 % *et* 90 %).

L'accélération de la vitesse observée entre 300 *et* 400 °C *environ est donc directement liée à l'existence transitoire d'une structure duplex,* soit : matrice restaurée + grains recristallisés de 3 μ.

Considérons maintenant l'évolution de la taille moyenne du grain qui se produit par chauffage au-delà de 400 °C. En fait, les essais effectués ont montré qu'il y avait lieu de considérer conjointement l'effet des deux facteurs suivants :

— taux de laminage initial ;

— valeur de la contrainte appliquée durant l'essai.

L'influence de ce dernier paramètre peut être évaluée soit en effectuant des essais sous contrainte différente, soit en comparant les structures observées dans le corps des éprouvettes ou dans leurs têtes (non sollicitées par la charge).

Entre 400 et 640 °C il se produit deux évolutions successives que l'on peut caractériser par la dimension moyenne des cristaux formés : on observe d'abord des grains dont la taille moyenne est de 15 μ environ, puis des grains dont la taille moyenne est de l'ordre de 35 μ ou davantage. Plus précisément, la partie de la courbe de fluage traduisant un ralentissement de la vitesse de déformation est à associer à la formation des grains de 15 μ. Par contre dès que l'on commence à observer la réaccélération finale de la vitesse de fluage (soit au-delà de 500 °C environ), il se produit parallèlement un grossissement du grain assez rapide de 15 μ à 35 μ, ce grossissement pouvant ensuite se poursuivre progressivement de sorte que l'on peut finalement observer des tailles de grain allant jusqu'à 200 μ.

Quelques expériences complémentaires permettent d'apporter les précisions suivantes :

— le fait d'appliquer ou non une contrainte ne semble pas influer de façon notable sur la dimension moyenne des grains de taille intermédiaire (soit 15 μ en moyenne). Ceci est montré par les micrographies a et b de la figure 9 prises après chauffage à 450 °C avec ou sans charge appliquée (les éprouvettes considérées étant extraites d'uranium préalablement écroui à 60 %). Pour autant, ce grain n'est pas en équilibre : après recuit de 30 h à cette même température (sans charge appliquée), sa dimension moyenne tend vers 30 μ environ.

— par contre, la dimension moyenne du grain obtenu après traitement à 640 °C est fortement accrue si l'éprouvette est simultanément sollicitée en tension uniaxiale. Ceci est illustré par les figures 9c et d ; par ailleurs, le grain ainsi formé évolue peu. Enfin, le taux de laminage initial n'exerce pas d'influence notable sur la taille du grain finale obtenue à 640 °C.

En conclusion, il ressort de ces divers examens micrographiques que *le ralentissement intermédiaire de la vitesse de fluage* observé au-delà de 400 °C est lié à la formation transitoire de grains de taille moyenne égale à 15 μ. Ces grains sont instables et tendent assez rapidement à atteindre une dimension moyenne de 35 μ environ ; ils continuent ensuite de croître, en fonction de la température jusqu'à atteindre 100 à 200 μ environ

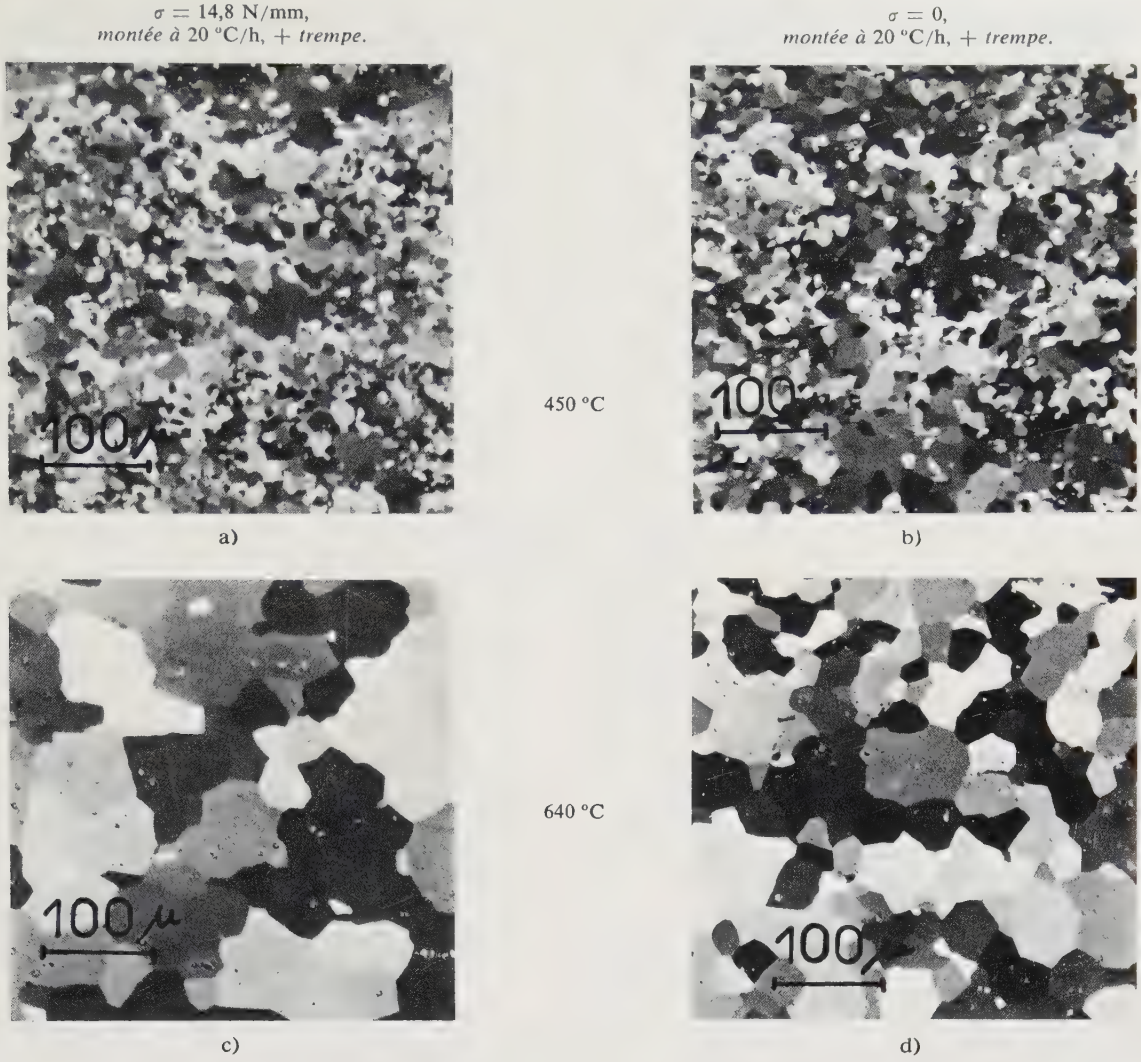


Fig. 9. — *Effet de la charge et des recuits prolongés sur les structures obtenues sur l'uranium électrolytique laminé à 60 %.*

si une charge est appliquée à l'éprouvette. Parallèlement on observe *une accélération de plus en plus notable de la vitesse de fluage* (en fait il y a lieu de souligner que deux facteurs agissent alors simultanément : l'augmentation de la température et l'accroissement de la taille moyenne du grain).

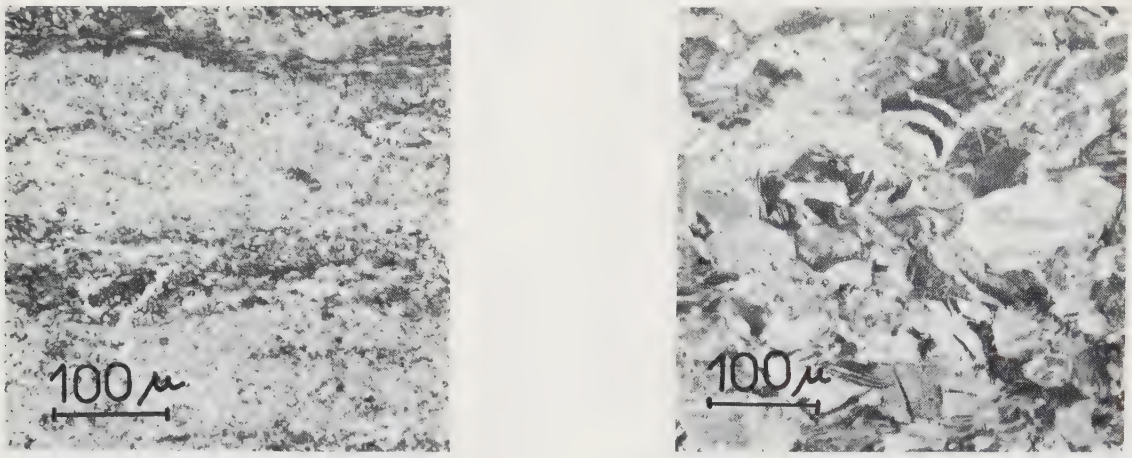
Par ailleurs, le fait essentiel est que la *formation d'une structure duplex* (matrice restaurée + petits grains ∅ 3 µ) provoque une *accélération de la vitesse* de fluage d'autant plus notable que le taux de laminage initial a été plus élevé ; lorsque toute la matrice restaurée a disparu et que la taille moyenne des grains est de l'ordre de 15 µ le matériau devient *plus résistant* au fluage ; enfin l'élévation de la température entraîne parallèlement un grossissement de grain et une accélération de plus en plus notable de l'allongement sous contrainte.

Influence du mode d'écrouissage initial.

Les conclusions précédentes ont permis de souligner le rôle prépondérant exercé par les premiers stades de l'évolution structurale du matériau écroui. Il nous est donc apparu nécessaire de déterminer si le mode d'écrouissage mis en jeu pour élaborer le matériau de départ pouvait pour sa part modifier ou non la nature des phénomènes révélés ultérieurement par dilatométrie sous charge.

A cette fin, nous avons préparé différemment deux tôles d'uranium à partir d'un même lingotin d'uranium d'origine électrolytique. L'échantillon initial était un parallélépipède de 33 × 11 × 26 mm usiné dans un cylindre de métal refondu par bombardement électronique. L'épaisseur de l'échantillon a été ramenée par laminage de 11 à 10 mm ; la billette a été ensuite coupée en deux parties égales qui ont subi successivement un recuit de 10 mn à 700 °C sous vide de 10^{-6} torr, une trempe à l'air et un recuit final de 6 h à 340 °C, toujours sous vide. (Cette série de traitements avait pour but de détruire la texture de fonderie initiale à grains relativement gros).

L'épaisseur de la première moitié de l'échantillon a alors été remenée jusqu'à une valeur finale de 1 mm au moyen de laminages successifs (taux de réduction



a) b)

Fig. 10. — *Structures* « U 340 » *et* « U 580 ».
a) *Recuits intermédiaires à* 340 °C ;
b) *Recuits intermédiaires à* 580 °C.

intermédiaires constants et égaux à 50 %) entrecoupés de recuits toujours effectués à 340 °C. Des éprouvettes repérées « U 340 » ont finalement été prélevées dans la tôle obtenue.

La seconde moitié de l'échantillon a été traitée de façon similaire à ceci près que les recuits intercalés entre les différents laminages ont été effectués cette fois à 580 °C ; des éprouvettes repérées « U 580 » ont été finalement prélevées dans la tôle obtenue.

Pour l'une et l'autre série d'éprouvettes, le taux de réduction final était donc égal à 50 %. L'examen micrographique des deux types d'éprouvettes montre (fig. 10 a, b) que :

— un échantillon type « U 340 » comporte des bandes hétérogènes non maclées ;

— par contre, un échantillon type « U 580 » présente une structure fortement maclée.

Ces faciès ont été prévus théoriquement par Cahn (14) et déjà observés par Cabane (15) (16).

Les courbes enregistrées sur ces deux types d'éprouvettes par dilatométrie sous charge sont représentées figure 11. On observe dans les deux cas les mêmes stades d'évolution que ceux décrits précédemment, les phénomènes étant toutefois beaucoup plus marqués dans le cas

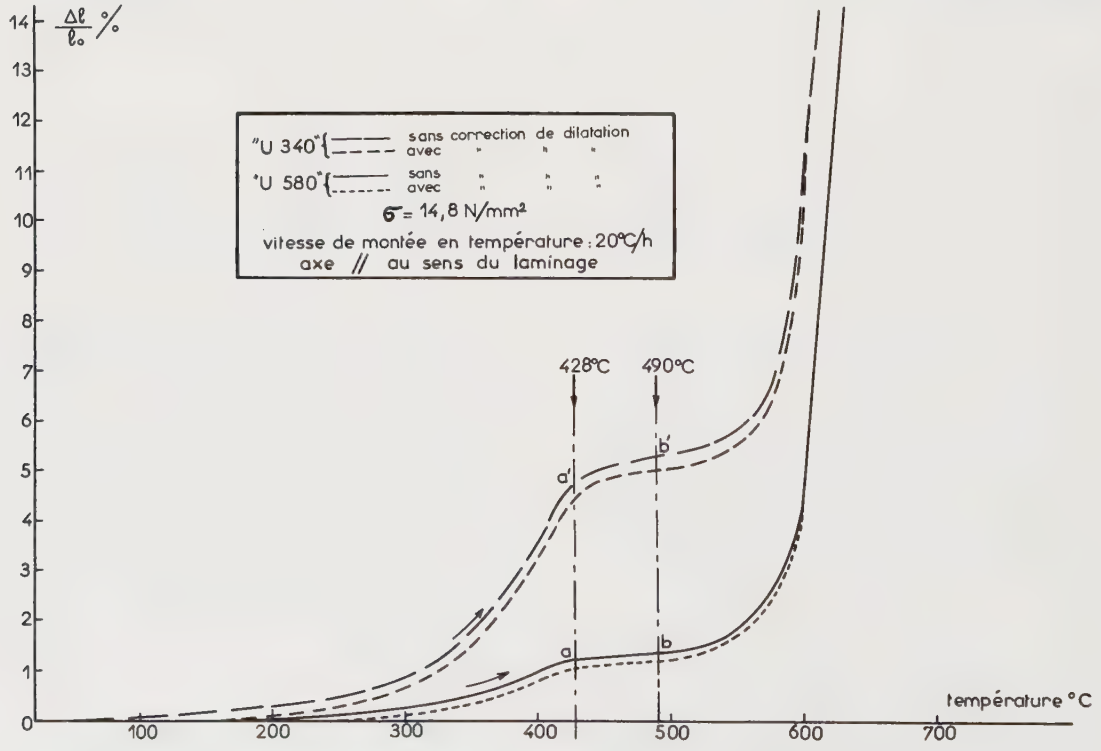


Fig. 11. — *Dilatométrie sous charge des structures* « U 340 » *et* « U 580 ».

de l'échantillon type « U 340 ». Ces courbes peuvent être divisées en trois parties :

— entre 20 et 428 °C : les variations dimensionnelles de l'échantillon « U 340 » sont nettement plus importantes que celle de l'échantillon « U 580 » ;

— entre 428 et 500 °C : pour les deux échantillons il y a nette diminution de la vitesse de fluage (l'effet étant plus notable pour l'échantillon du type « U 580 ») ;

— enfin, de 500 à 600 °C les deux portions correspondantes des courbes sont parfaitement superposables par translation.

Les figures 12 a → d représentent les structures micrographiques développées successivement dans chacun des trois intervalles de température définis ci-dessus, et ce, respectivement pour les échantillons repérés « U 340 » et « U 580 ».

— Dans la première zone de température, à 400 °C par exemple (fig. a et c) on note qu'il apparaît des petits grains (∅ 2 à 3 μ) dans les deux échantillons : ce phénomène est toutefois beaucoup plus accusé pour l'échantillon « U 340 », ce qui justifie le fait que les variations d'allongement observées soient plus notables avec ce type d'échantillon.

— Dans la dernière zone de température, à 645 °C par exemple, la taille de grain est identique pour les deux types d'éprouvettes : structure similaire à celle montrée par la figure 9 c. Il est donc normal que les portions homologues des courbes relatives respectivement à « U 340 » et « U 580 » soient superposables.

— Enfin, dans la zone intermédiaire, à 440 °C par exemple (fig. b et d), la taille moyenne des grains constituant l'échantillon « U 340 » est plus petite que celle des grains de l'éprouvette « U 580 ». Ce fait semble montrer qu'à cette température, la résistance au fluage est d'autant plus grande que la taille du grain est elle-même élevée. Par contre, à température inférieure à 430 °C un comportement inverse est généralement observé.

Remarques : Dans tout ce qui précède, nous n'avons généralement considéré que des éprouvettes prélevées parallèlement à la direction de laminage. Etant donné

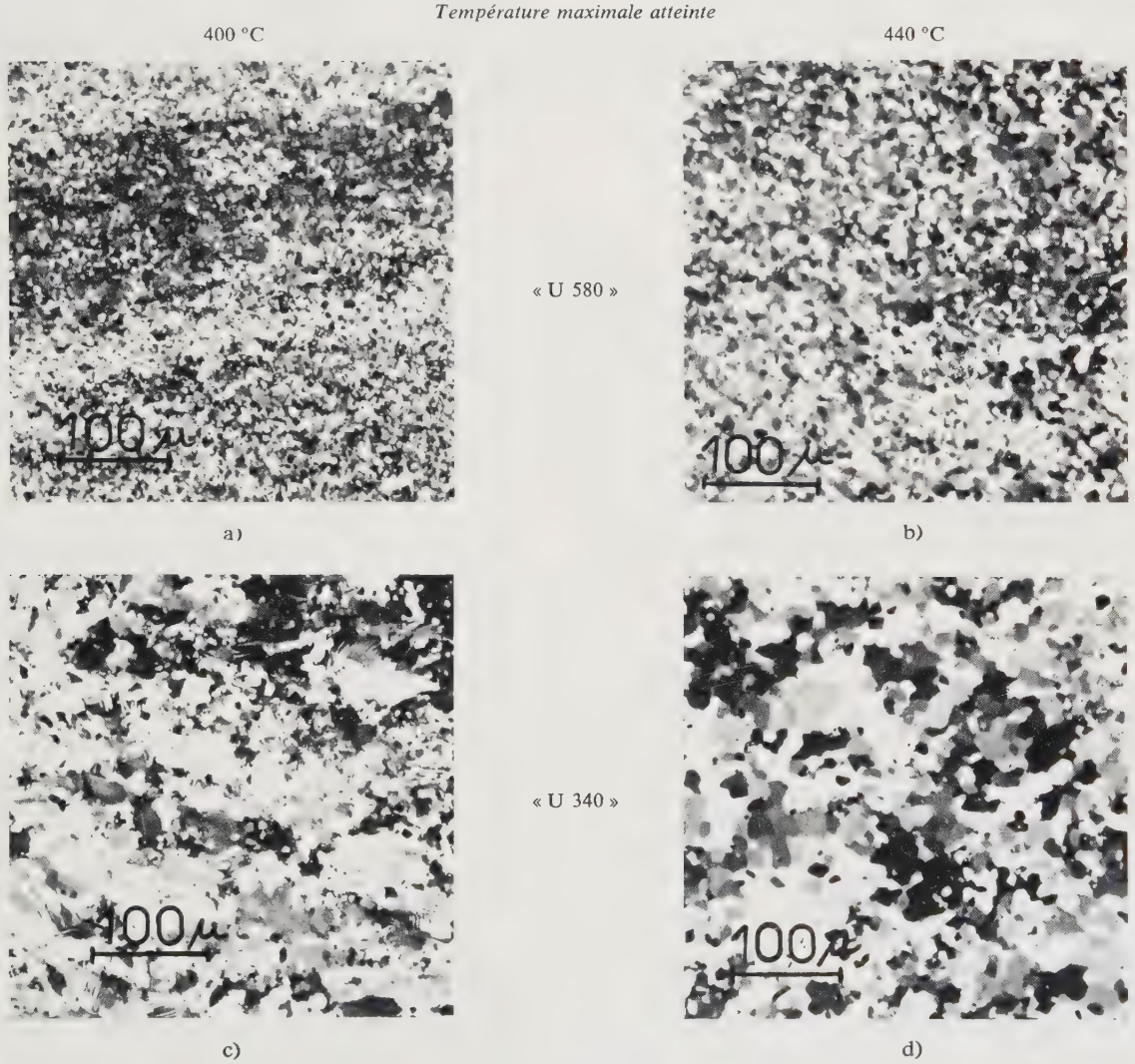


Fig. 12. — *Différents états structuraux obtenus par dilatométrie sous charge sur* « U 340 » *et* « U 580 ». $\sigma = 14{,}8$ N/mm². *Vitesse de montée en température* = 20 °C/h.

le caractère très anisotrope de la phase α et l'existence normale de textures à l'état écroui, il était prévisible que des expériences similaires effectuées avec des éprouvettes prélevées normalement à la direction de laminage conduisent à des résultats différents. La figure 13 confirme cette hypothèse et montre que les allongements sont légèrement plus importants avec les éprouvettes prélevées perpendiculairement à la direction de laminage. Pour autant, l'allure générale des courbes n'est pas fondamentalement modifiée. Il faut remarquer d'ailleurs que si on effectue la correction dilatométrique sur les deux courbes de la figure 13, celles-ci deviennent pratiquement confondues.

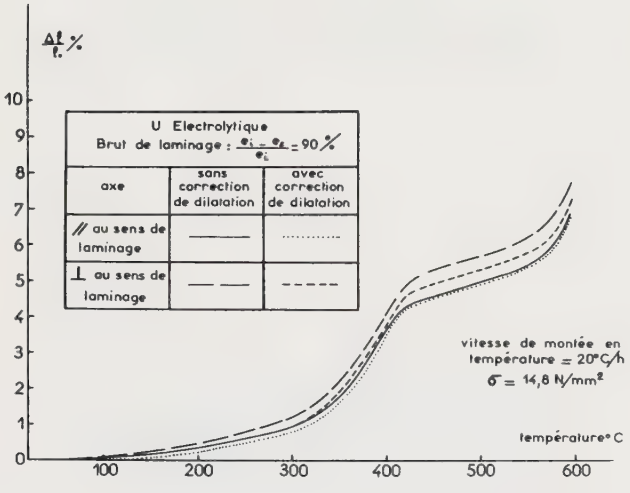


Fig. 13. — *Effet de la texture sur la dilatométrie sous charge.*

Enfin, à partir des observations précédentes, il est possible de suggérer que le ralentissement intermédiaire observé à partir de 400-420 °C est vraisemblablement lié à un changement de texture (3).

TRANSFORMATION ALLOTROPIQUE $\alpha \rightleftarrows \beta$ DE L'URANIUM SOUS CONTRAINTE UNIAXIALE DE TENSION

Le problème des anomalies dimensionnelles associées aux transformations allotropiques ou aux changements de phase en général, a déjà suscité un grand nombre de travaux. A titre d'exemple, on peut citer ceux relatifs à la transformation $\alpha \rightleftarrows \beta$ du cobalt (17) ou à la transformation $\alpha \rightleftarrows \gamma$ du fer (18) (19) (20) (21) (22) (23) ; de même, divers auteurs ont étudié les transformations se produisant dans les laitons (24), les aciers (25) (26) (27) (28) ou les alliages Ag-Zn (29) (30) (31) 32). Par ailleurs, les variations dimensionnelles induites par cyclage thermique de l'uranium de part et d'autre du point de transformation $\alpha \rightleftarrows \beta$ ont également fait l'objet de recherches (33). L'appareillage utilisé dans la présente étude étant parfaitement adapté à de tels essais, ainsi d'ailleurs que nous l'avons signalé antérieurement (1), nous avons donc songé à l'utiliser systématiquement pour analyser de plus près le mécanisme de la transformation allotropique $\alpha \rightleftarrows \beta$ effectuée sous contrainte plus ou moins importante.

Méthode expérimentale

L'uranium utilisé pour cette série d'expériences était de l'uranium technique mis en forme comme indiqué au § « Influence de divers paramètres ». Les éprouvettes ont été prélevées parallèlement à la direction de laminage et dans une même bande de façon à minimiser l'influence éventuelle des variations de texture d'une éprouvette à l'autre.

Après matriçage ces éprouvettes ont été traitées sous vide durant 24 h à 250 °C puis durant 96 h à 638 °C ; elles ont été finalement refroidies lentement dans le four de traitement. La taille de grain ainsi développée était telle que dans la section droite de chaque éprouvette on pouvait dénombrer avant essai environ 600 cristaux α.

Les essais de dilatométrie sous charge ont été effectués en appliquant des contraintes variant de 1 à 15 N/mm² avec une vitesse de chauffage de 100 °C/h et de refroidissement de 170 °C/h.

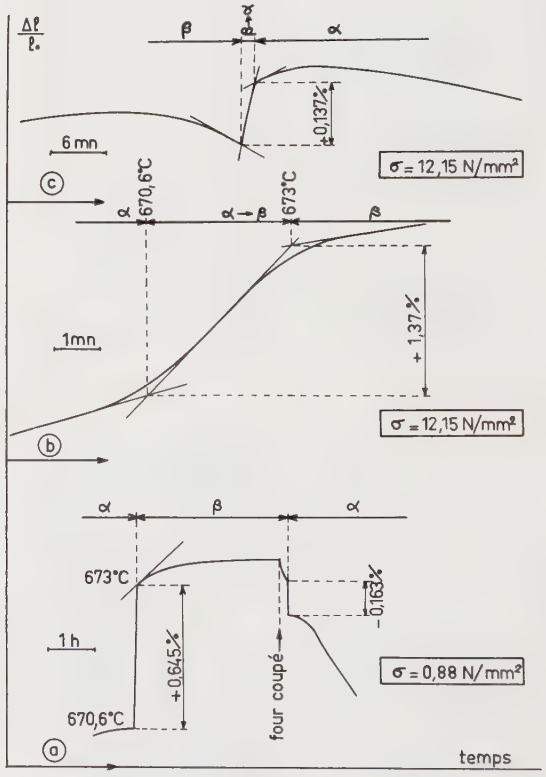


Fig. 14.

a) *Premier type de courbe (contrainte faible) enregistrée au passage $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ sur de l'uranium technique ;*

b) *Troisième type (contrainte élevée) de courbe enregistrée sur de l'uranium technique au passage $\alpha \rightarrow \beta$;*

c) *Troisième type de courbe (contrainte élevée) enregistrée sur de l'uranium technique, au passage $\beta \rightarrow \alpha$.*

Résultats obtenus.

Différents types de courbes enregistrées.

L'ensemble des courbes expérimentales peut être divisé en trois groupes :

— *type 1* : sous faible contrainte ($\sigma < 6$ N/mm²) on constate qu'il se produit une dilatation au passage $\alpha \rightarrow \beta$ et une contraction au passage $\beta \rightarrow \alpha$. C'est le comportement classique généralement observé avec l'uranium ; la figure 14a en montre un exemple.

Soulignons que les anomalies associées aux transformations à la chauffe ou au refroidissement sont bien mises en évidence par des changements de pentes très nets.

D'autre part, le sens des anomalies dimensionnelles associées au cycle $\alpha/\beta/\alpha$ est le même que celui observé en l'absence de contraintes appliquées.

— *type 2* : pour des contraintes comprises entre 6,5 et 10 N/mm², le changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$ est toujours accompagné d'une expansion ; par contre la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ se caractérise d'abord par une dilatation observée au début de $\beta \rightarrow \alpha$ pour les charges proches de 6,5 N/mm² ; elle tend à diminuer en amplitude au fur et à mesure que croît la valeur de la contrainte appliquée, pour finalement s'annuler lorsque cette contrainte devient voisine de 10 N/mm². La figure 15 est relative à un essai de ce type effectué sous une contrainte de $\sigma = 7{,}35$ N/mm².

— *type 3* : si la contrainte appliquée devient supérieure à 10 N/mm², on continue à observer un allongement relatif lors du changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$; cependant les changements de pente qui permettent de le définir sont beaucoup moins nets (fig. 14*b*). Par contre, la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ se caractérise cette fois par une anomalie uniquement positive (fig. 14*c*).

L'ensemble des courbes obtenues pour les différentes valeurs des contraintes appliquées a permis de reporter sur un même graphique (fig. 16) les variations dimensionnelles relatives enregistrées lors des changements de phase $\alpha \rightleftarrows \beta$, en fonction de ces contraintes; par ailleurs, nous avons tracé sur cette même figure la courbe correspondant à la somme algébrique de ces variations relatives. A l'abscisse — 0,136 N/mm² correspondent des valeurs déterminées à l'aide d'un dilatomètre DHT 60 ADAMEL : avec ce type de montage, la contrainte appliquée est une compression (d'où le signe négatif). On constate d'ailleurs que les valeurs des anomalies dilatométriques observées dans ces conditions sont sensiblement identiques à celles obtenues en extrapolant à contrainte nulle les courbes déduites de mesures effectuées à l'aide de la machine de fluage (fig. 16).

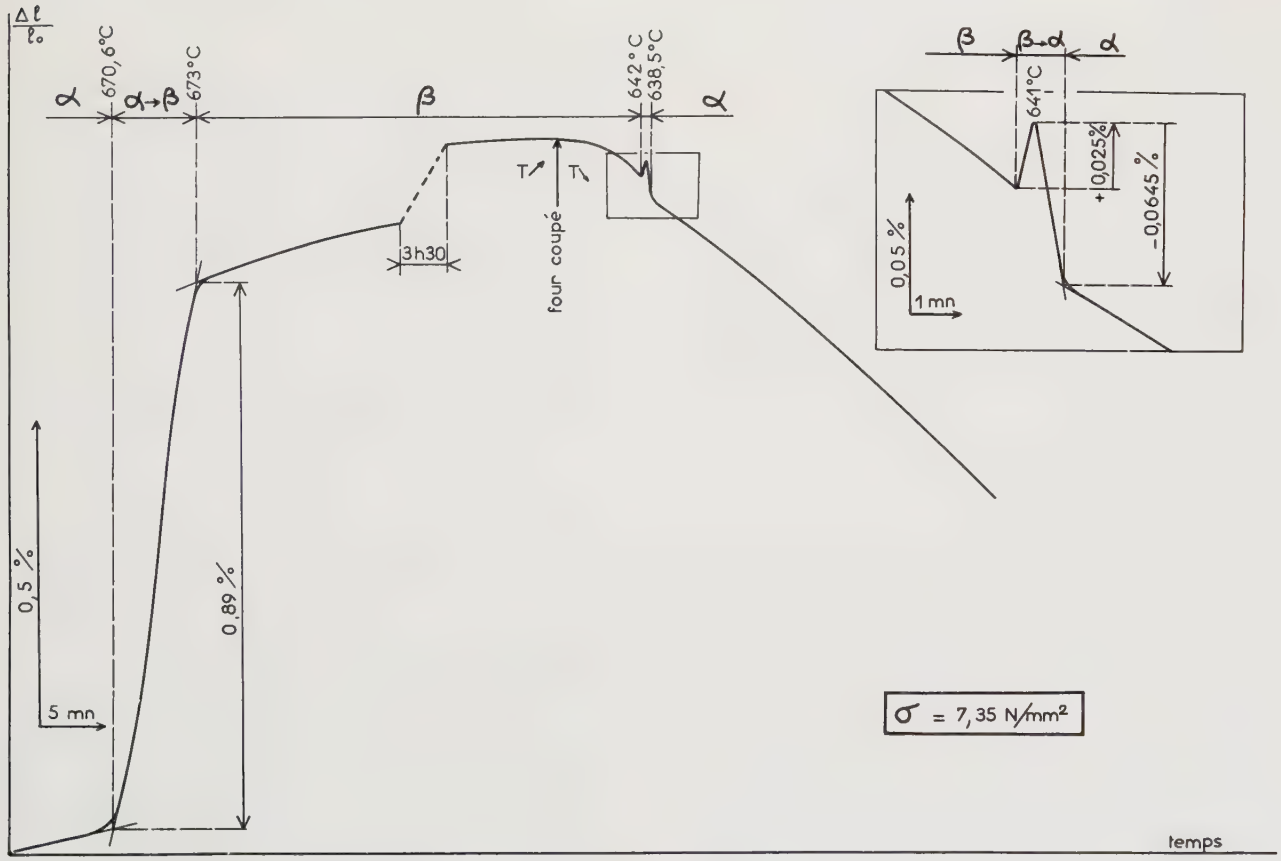


Fig. 15. — *Deuxième type de courbe enregistrée (contrainte moyenne $\sigma = 7{,}35$ N/mm²) au passage $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ sur de l'uranium technique.*

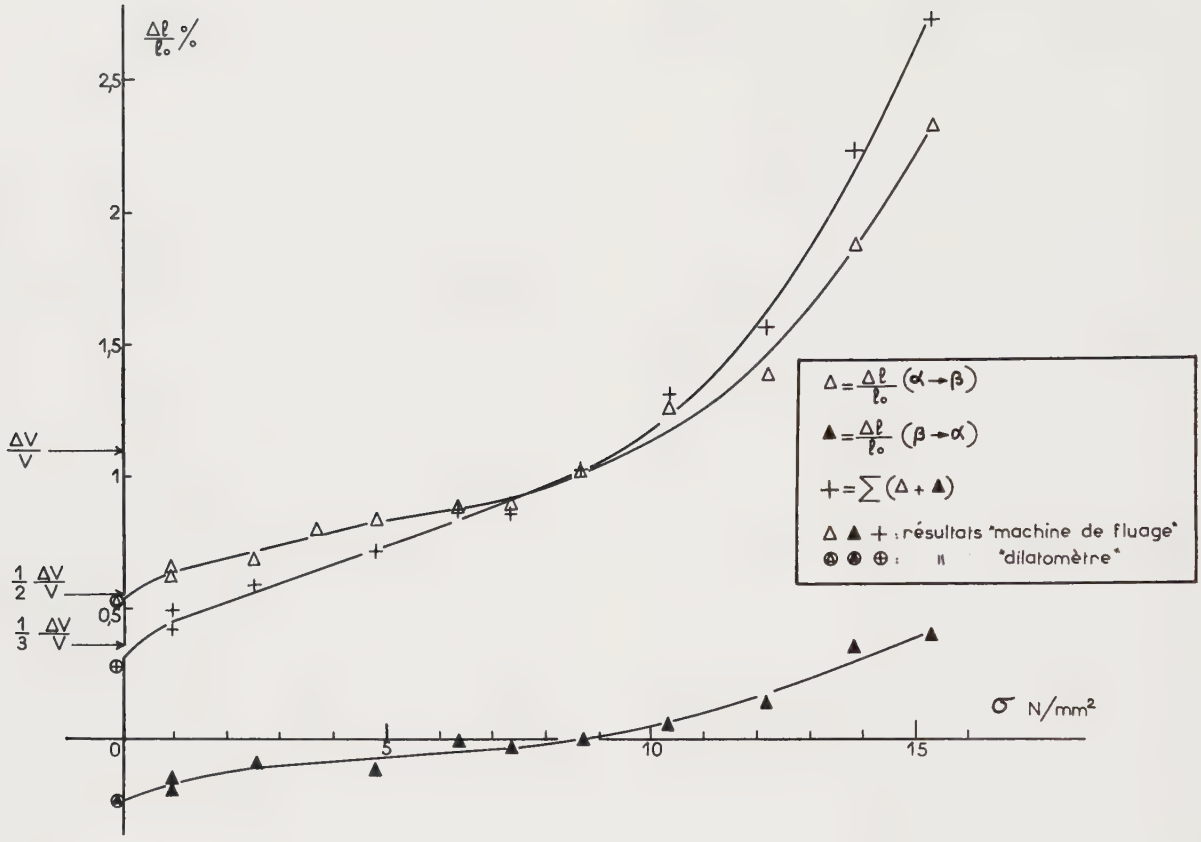


Fig. 16. — *Obtention de la courbe donnant l'excès d'élongation* $\Delta l/l$ *au cyclage* $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ *pour différentes contraintes sur l'uranium technique.*

Observations micrographiques.

Les examens micrographiques effectués parallèlement ont principalement montré qu'après un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ les éprouvettes demeurent polycristallines si la contrainte appliquée durant ce cycle a été suffisamment élevée, soit $\sigma \geqslant 6{,}35$ N/mm². Par contre, pour de faibles contraintes, $0{,}95 < \sigma < 2{,}52$ N/mm², on tend à développer de gros cristaux, dont la surface est de l'ordre de 5 mm².

Examen par rayons X.

Des diagrammes de Laue, enregistrés à l'aide d'une anticathode de Cobalt, montrent que ces gros cristaux sont fortement polygonisés. Pour une contrainte de 2,5 N/mm², on n'observe déjà plus que quelques alignements hyperboliques ; pour une contrainte égale à 15,2 N/mm² il n'y a plus que des ponctuations groupées qui commencent à dessiner des fractions d'anneaux de Debye.

Il est bien connu que si l'on refroidit lentement une éprouvette d'uranium depuis le domaine β (sans lui appliquer de contrainte) on obtient des gros grains α polygonisés (34). Les résultats précédents montrent donc qu'il en est encore de même si on répète l'expérience en appliquant une contrainte faible (2 N/mm²).

Par contre, pour des contraintes plus fortes, le nombre de dislocations engendrées lors du changement de phase β/α (somme de celles directement liées au changement de maille et de celles induites par la contrainte appliquée) devient très important. Ce fait entraîne une polygonisation et des désorientations telles que l'échantillon devient recristallisé à grains de taille de plus en plus faible.

Variation des températures de transformation à la chauffe ou au refroidissement.

La variation des températures de transformation $\alpha \rightleftarrows \beta$ a été reportée dans la figure 17 en fonction de la contrainte appliquée. Il n'y a apparemment pas d'évolution des températures de début et de fin de transformation $\alpha \rightarrow \beta$ en fonction de σ. Par contre, le début de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ augmente légèrement lorsque la contrainte appliquée croît : ceci est sans doute dû au fait que plus la contrainte exercée est élevée, plus il est facile de détecter l'apparition des premiers germes α plus ductiles que la matrice β aux dépens de laquelle ils prennent naissance (34). Nous n'avons pu tracer la courbe représentant les températures de fin de transformation $\beta \rightarrow \alpha$ car les valeurs obtenues sont trop dispersées (ceci étant dû vraisemblablement à la dimension importante et hétérogène du grain β formé transitoirement).

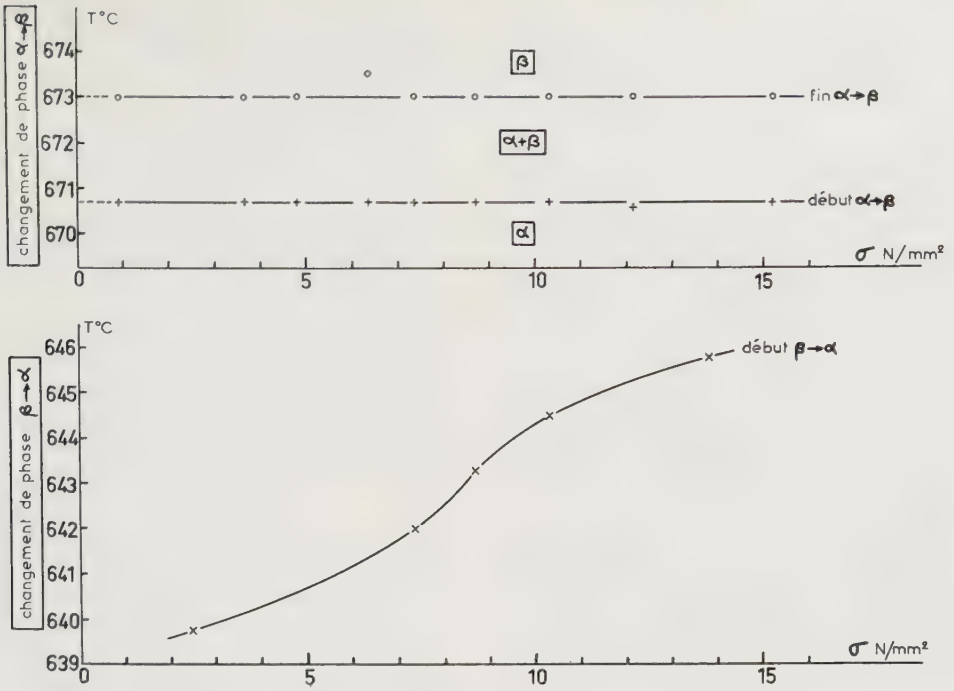


Fig. 17. — *Etude de la variation de température de début et de fin des changements de phase* $\alpha \rightarrow \beta$ *et* $\beta \rightarrow \alpha$. *en fonction de la contrainte de traction appliquée.*

Tentative d'explication des résultats obtenus.

Signification de l'intersection de la courbe de la figure 16 $(\Delta l/l) = f(\sigma)$ *avec l'axe des ordonnées.*

Le gradient longitudinal appliqué à l'éprouvette était d'environ 2 °C/cm dans les expériences effectuées avec la vitesse de chauffe 100 °C/h.

Par suite, dans la figure 16, la valeur $\Delta l/l$ pour une contrainte nulle est sensiblement égale à $(1/3)(\Delta V/V)$ ($\Delta V/V$ = variation de volume théorique au passage $\alpha \rightarrow \beta$) en raison du faible gradient, d'où une germination hétérogène ; par contre $\Delta l/l$ tend vers $\Delta V/V$ lorsque le gradient devient très accusé et quand la transformation se produit par germination frontale.

Interprétation des diverses courbes enregistrées au changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$ *et* $\beta \rightarrow \alpha$.

Pour analyser les résultats obtenus, nous nous placerons dans le cas particulier de la courbe enregistrée au passage $\beta \rightarrow \alpha$ illustré par la figure 15.

Nous ferons l'hypothèse que les variations dimensionnelles enregistrées lors des changements de phase $\alpha \rightleftarrows \beta$ sont la somme de deux effets (fig. 18) :

— contraction progressive due au changement de maille : courbe AVW ;

— élongation de fluage due à la tension appliquée : courbe AIJ. La somme algébrique de ces deux évolutions dimensionnelles conduit à la courbe résultante ABCD enregistrée dans la figure 15. En effet, la partie AI de la courbe AIJ correspond au fluage des nouveaux germes de phase α apparaissant au sein de la matrice β. Cette courbe AIJ s'incurve à partir d'un point tel que I, ce qui traduit la consolidation de ces germes α après une certaine déformation ; la partie IJ correspond égale-

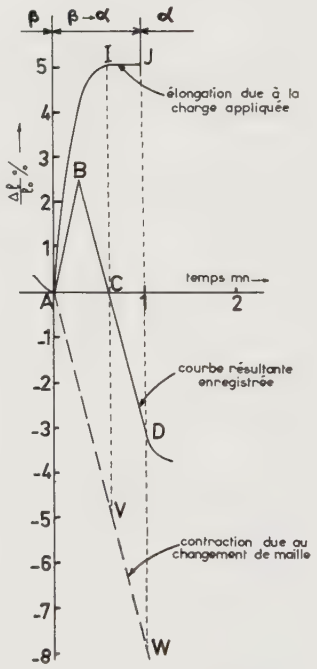


Fig. 18. — *Schéma possible d'explication de la courbe de la figure* 15 *au passage* $\beta \rightarrow \alpha$.

ment au ralentissement de la vitesse de fluage liée à la décroissance de la température.

Un tel schéma permet également d'interpréter le comportement des autres types de transformation $\beta \rightarrow \alpha$:

Si la contrainte est faible ($\sigma < 6$ N/mm^2) figure 14*a*, on n'observe pas le tronçon partie ABC car la contrainte n'est alors pas assez forte pour faire fluer les nouveaux germes de phase α qui apparaissent :

— quand la contrainte augmente, soit $\sigma = 7{,}35$ N/mm^2, l'anomalie dimensionnelle est du type de celle de la figure 15 ;

— pour une contrainte encore plus forte, soit $\sigma = 8{,}7$ N/mm^2, c'est le tronçon CD qui est absent ;

— pour les contraintes très fortes $\sigma > 8{,}7$ N/mm^2, la partie BCD disparaît du fait que le fluage de la phase α induit par cette forte contrainte est prépondérant malgré la baisse de température (fig. 15).

Dans le cas du changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$ les mêmes observations sont valables mais du fait que la contrainte et la dilatation associée au changement de maille produisent des allongements de même sens, il est beaucoup plus difficile de distinguer les diverses étapes du phénomène.

Comparaison du comportement au changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$ et $\beta \rightarrow \alpha$ de l'uranium avec celui d'autres métaux ou alliages.

A partir des valeurs de la courbe de la figure 16, donnant la somme algébrique des variations dimensionnelles relatives enregistrées lors des changements de phase $\alpha \rightarrow \beta$ et $\beta \rightarrow \alpha$:

$$\Sigma \left[\left(\frac{\Delta l}{l_0} \right)_{\alpha \rightarrow \beta} + \left(\frac{\Delta l}{l_0} \right)_{\beta \rightarrow \alpha} \right]$$

en fonction de la contrainte appliquée, nous avons tracé la courbe de la figure 19 traduisant, pour l'uranium, la variation de

$$\frac{\Sigma \left[\left(\frac{\Delta l}{l_0} \right)_{\alpha \rightarrow \beta} + \left(\frac{\Delta l}{l_0} \right)_{\beta \rightarrow \alpha} \right]}{\frac{\Delta V}{V}}$$

en fonction du rapport

$$\frac{\sigma}{H_{v\,\text{moyen}}} \text{ avec } \frac{\Delta V}{V_\alpha} = \frac{V_\beta - V_\alpha}{V_\alpha} = 1{,}12\ \%$$

(valeur théorique calculée à partir des rayons X. (35)) et $H_{v\ \text{moyen}}$ défini par la relation suivante, d'après (22) :

$$\frac{1}{H_{v\,\text{moyen}}} = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{H_{v\alpha}} + \frac{1}{H_{v\beta}} \right]$$

$H_{v\ \text{moy}}$ = dureté moyenne des deux phases α et β

$H_{v\ \alpha}$ = dureté de la phase $\alpha = 98{,}1$ N/mm^2 (36)

$H_{v\ \beta}$ = dureté de la phase $\beta = 334$ N/mm^2 (36)

Nous avons en outre reporté sur la figure 19 les courbes tracées par Jong et Rathenau (22), pour différents métaux et alliages : Fe + 0,008 % pds Ni, Fe+0,23 pds % C+autres impuretés (acier), Fe+30 % pds Ni, cobalt, Cu + 39,2 % pds Zn.

Nous voyons que la courbe de l'uranium, relative à nos résultats, se trouve dans le faisceau des autres courbes, ce qui suggère une corrélation entre le phénomène d'excès d'allongement au changement de phase sous contrainte et les valeurs de $H_{v\ \text{moy}}$ et ΔV.

Le phénomène de superductilité de l'uranium semble donc être aussi fonction de ces deux facteurs.

Toutefois, il y a lieu de souligner que la courbe de l'uranium ne passe pas par l'origine ; ceci provient du

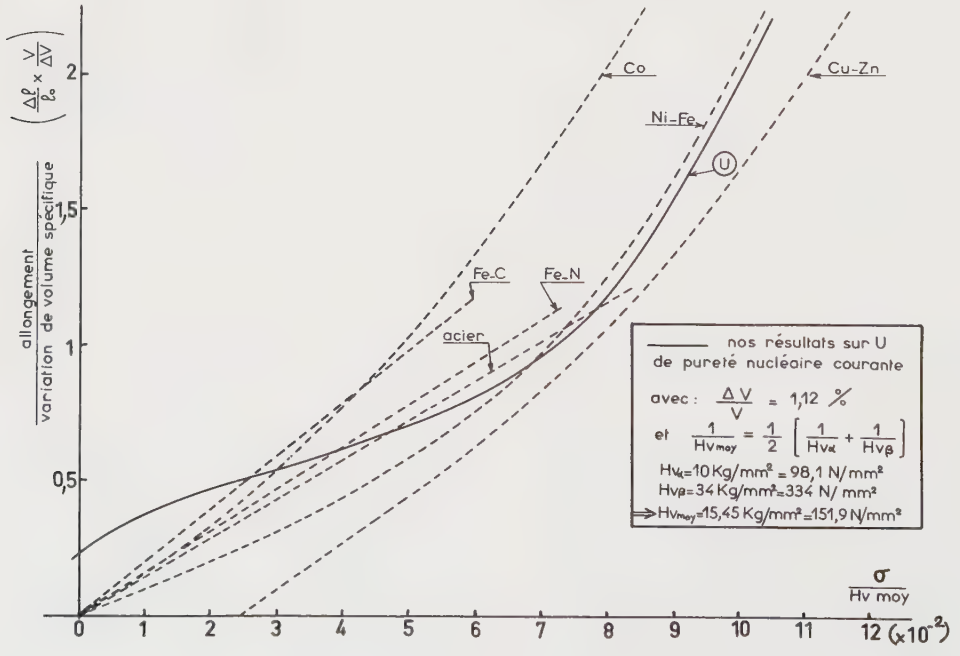


Fig. 19. — *Comparaison du comportement de l'uranium technique au cyclage $\alpha \rightleftharpoons \beta$ sous contrainte avec d'autres métaux.*

fait que s'il n'y a pas de contrainte appliquée, la dilatation de l'uranium au passage $\alpha \rightarrow \beta$ est plus grande que la contraction associée à la transformation inverse $\beta \rightarrow \alpha$. Il faut noter que si la contraction associée au passage $\alpha \rightarrow \gamma$ du fer Armco est à peu près égale à la dilatation associée à la transformation inverse $\gamma \rightarrow \alpha$ il n'en est pas de même du fer Armco purifié sous hydrogène qui présente comme l'uranium une différence entre les amplitudes de dilatation et de contraction, phénomène qui n'a d'ailleurs jamais été expliqué de façon satisfaisante.

Ce phénomène entraîne par ailleurs la « croissance » sous cyclage thermique de part et d'autre du point de transformation $\alpha \rightleftarrows \beta$ (1).

Il faut aussi noter que sur la figure 19, la pente de la courbe caractérisant l'uranium augmente de façon notable à partir de

$$\frac{\sigma}{H_{\nu\ moy}} = 5{,}5.10^{-2} \qquad \text{soit} \qquad \sigma = 8{,}35\ \text{N/mm}^2$$

Il est intéressant de souligner qu'il s'agit précisément de la valeur pour laquelle l'anomalie dilatométrique au changement de phase $\beta \rightarrow \alpha$, normalement négative, devient positive. Ce résultat confirme donc que pour des contraintes supérieures à 8,35 N/mm², le fluage l'emporte sur l'effet volumique lié à la transformation allotropique.

Déformation plastique induite dans l'uranium par la transformation allotropique.

Nous avons repris un calcul effectué antérieurement par de Jong et Rathenau (22) en le modifiant légèrement; le principe de ce calcul est le suivant (fig. 20) : Soit une sphère de phase α dont le rayon est égal à a. Si cette sphère se transforme en phase β, son volume s'accroît de

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_a \left(\frac{4}{3}\pi a^3\right) = \Delta V_a$$

Tout point situé primitivement hors de la sphère de rayon a, à une distance r (avec $r \geqslant a$) va donc subir un déplacement égal à :

$$u_r = r \cdot \frac{1}{3}\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_r \# \frac{r\,(\Delta V)_a}{3\,\frac{4\pi}{3} r^3} = \frac{1}{3}\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_a \frac{a^3}{r^2} \qquad [1]$$

Ce résultat montre que les déplacements vont être maxima pour r petit, c'est-à-dire pour $r \simeq a$.

Expression des taux d'allongement radial ε_r et tangentiel ε_t.

a) Calcul de ε_r.

Soit un élément de volume ABCD qui, après trans-

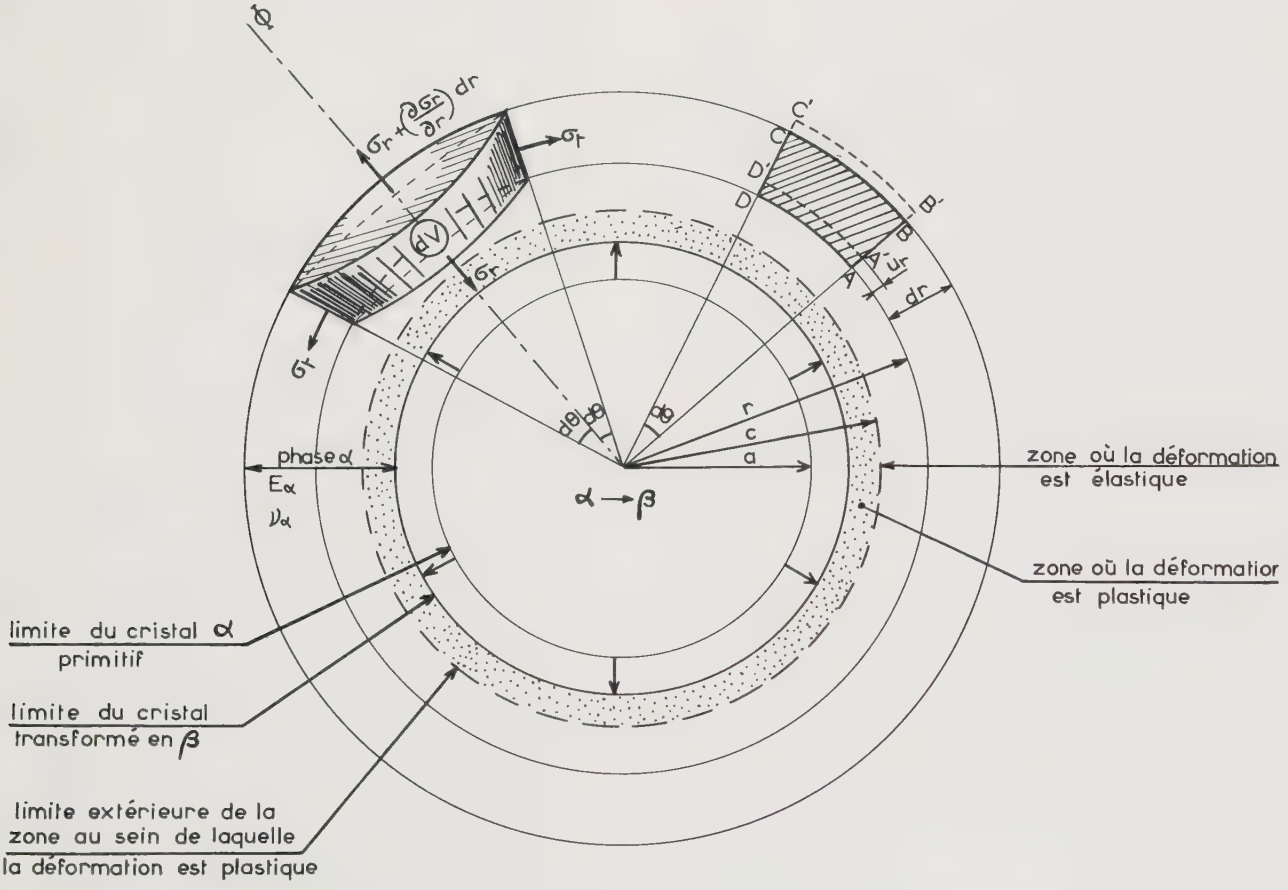


Fig. 20. — *Schéma d'un germe de β en formation dans la matrice α.*

formation du cristal sphérique de rayon a, se déforme et devient A'B'C'D'. Si le point A se déplace d'une distance u_r dans la direction radiale, le point B va se déplacer d'une quantité :

$$u_r + \left(\frac{\partial u_r}{\partial r}\right) dr$$

L'allongement relatif radial s'exprime donc par :

$$\varepsilon_r = \frac{\partial u_r}{\partial r} = \frac{du_r}{dr} \qquad [2]$$

En dérivant donc la relation [1] par rapport à r, il devient :

$$\varepsilon_r = -\frac{2}{3}\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_a \frac{a^3}{r^3} \qquad [3]$$

b) Calcul de ε_t.

Lors de la déformation induite par la transformation de la sphère de rayon a :

— le segment AD s'accroît de la longueur $rd\theta$ à la longueur $(r + u_r)\, d\theta$; il en résulte un allongement relatif de AD traduit par :

$$\frac{(r + u_r)\, d\theta - r d\theta}{r d\theta} = \frac{u_r}{r}$$

— d'autre part, quand le point D vient en D', ceci entraîne un allongement supplémentaire de la distance AD qui se chiffre par $(du_t/\theta)\,(d\theta)$. Comme AD $= rd\theta$, l'allongement relatif complémentaire est égal à :

$$\frac{\left(\frac{\partial u_t}{\partial \theta}\right) d\theta}{r d\theta} = \frac{1}{r}\frac{\partial u_t}{\partial \theta}$$

Le taux de déformation tangentielle est donc la somme de ces deux effets, soit :

$$\varepsilon_t = \frac{1}{r}\frac{\partial u_t}{\partial \theta} + \frac{u_r}{r} \qquad [4]$$

La sphère restant une sphère après déformation on a :

$$\frac{\partial u_t}{\partial \theta} = 0 \qquad \text{donc } \varepsilon_t = \frac{u_r}{r}$$

Ces deux résultats confirment donc que les déformations résultant des déplacements élémentaires sont les plus importantes au voisinage de la surface externe du cristal primitif α ; c'est donc dans cette région qu'une déformation plastique va pouvoir s'opérer tandis qu'en des points éloignés du germe α des déformations ne pourront être qu'élastiques. Il va donc exister une surface limite intermédiaire, définie par $r = c$ séparant les domaines où il y a respectivement :

$a \leqslant r \leqslant c$ déformation plastique

$c \leqslant r < \infty$ déformation élastique

Condition d'équilibre d'un élément de volume dV situé dans la zone de déformation élastique.

Soient σ_r et σ_t les contraintes radiales et tangentielles s'exerçant sur les faces du volume dV. Les forces correspondantes projetées sur la direction Φ sont respectivement égales à :

— sur les faces basales : (calottes sphériques)

$$(\sigma_r + d\sigma_r)\,(r + dr)^2\, d\theta^2 - \sigma_r \pi r^2 d\theta^2$$

$$\simeq \pi\, d\theta^2 (r^2 d\sigma_r + 2r\sigma_r dr)$$

— sur les faces latérales : (tronc de cône)

$$\sigma_t \,.\, 2\pi r\, dr\, d\theta\, \sin d\theta = 2\pi r\, \sigma_t dr\, d\theta^2$$

Si l'élément de volume dV est en équilibre, on aura :

$$\pi d\theta^2\, (r^2 d\sigma_r + 2r\, \sigma_r dr) = 2\pi r\, \sigma_t\, dr\, d\theta^2$$

soit :

$$\frac{r^2 d\sigma_r}{dr} + 2r\, \sigma_r = \boxed{2r\, \sigma_t = \frac{d}{dr}(r^2\, \sigma_r)} \qquad [5]$$

Si maintenant, on suppose que la phase α, déformée élastiquement, obéit à la loi de Hooke, on peut écrire, en vertu du principe de superposition :

$$\begin{cases} \varepsilon_r = \dfrac{1}{E}[\sigma_r - \nu\,(\sigma_t + \sigma_t)] \\ \varepsilon_t = \dfrac{1}{E}[\sigma_t + \nu\,(\sigma_r + \sigma_t)] \end{cases}$$

Si E et ν désignent respectivement le module d'Young et le coefficient de Poisson de la phase α, ces expressions peuvent aussi s'écrire :

$$\begin{cases} E\,\varepsilon_r = \sigma_r - 2\nu\,\sigma_t & [6] \\ E\,\varepsilon_t = \sigma_t\,(1 - \nu) - \nu\sigma_r & [7] \end{cases}$$

Or, d'après les relations [4] et [2] on a :

$$r\varepsilon_t = u_r \qquad \text{et} \qquad \frac{d(r\varepsilon_t)}{dr} = \frac{du_r}{dr} = \varepsilon_r$$

Multiplions les deux membres de l'équation [7] par r ; il vient :

$$rE\,\varepsilon_t = \sigma_t\, r(1 - \nu) - \nu r\, \sigma_r = E\, u_r$$

Dérivons par rapport à r :

$$\frac{E\, du_r}{dr} = E\varepsilon_r = (1 - \nu)\frac{d(r\sigma_t)}{dr} - \frac{\nu d(r\sigma_r)}{dr}$$

D'où, d'après [6] :

$$\sigma_r - 2\nu\sigma_t = (1 - \nu)\frac{d(r\sigma_t)}{dr} - \nu\frac{d(r\sigma_r)}{dr}$$

En utilisant la relation [5], cette expression peut encore s'écrire :

$$\sigma_r - \frac{\nu}{r}\frac{d}{dr}(r^2\sigma_r) = (1 - \nu)\frac{1}{2}\cdot\frac{d^2}{dr^2}(r^2\sigma_r) - \frac{\nu d(r\sigma_r)}{dr}$$

Soit, en développant et en simplifiant :

$$\frac{1 - \nu}{2}\frac{d^2(r^2\sigma_r)}{dr^2} - \sigma_r(1 - \nu) = 0$$

Ou :

$$\frac{d^2(r^2\sigma_r)}{dr^2} - 2\sigma_r = 0$$

Posons $y = r^2\sigma_r$; l'équation précédente se simplifie :

$$\frac{d^2y}{dr^2} - \frac{2y}{r^2} = 0$$

Elle admet comme solution :

$$y = c_1 r^2 + \frac{c_2}{r}$$

D'où l'on déduit :

$$\sigma_r = c_1 + \frac{c^2}{r^3}$$

Et, d'après la relation [5] :

$$2r\sigma_t = \frac{d}{dr}\left(c_1 r^2 + \frac{c_2}{r}\right) = 2r\,c_1 - \frac{c_2}{r^2}$$

soit :

$$\sigma_t = c_1 - \frac{c^2}{2r^3}$$

Pour déterminer les constantes c_1 et c_2 il suffit de préciser les conditions aux limites suivantes :

si $\begin{cases} r = c & \sigma_r = -\tau \text{ (tension radiale agissant sur la sphère de rayon } c) \\ r = \infty & \sigma_r = 0 \end{cases}$

On en déduit ;

$$c_1 = 0$$

$$c_2 = -c^3\,\tau$$

D'où :

$$\sigma_r = -\frac{c^3\tau}{r^3} \qquad [8]$$

$$\sigma_t = +\frac{c^3\tau}{2r^3} \qquad [9]$$

Reportons ces valeurs de σ_r et σ_t dans l'équation [6] :

$$E\varepsilon_r = -\frac{c^3\tau}{r^3}(1+\nu)$$

Cette expression est valable pourvu que $r \geqslant c$; comme d'autre part la relation [3] — dérivant elle-même de la relation [1] — est valable pour $r \geqslant a$, on peut écrire :

$$-\frac{2}{3}E\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_a \frac{a^3}{r^3} = -\frac{c^3\tau\,(1+\nu)}{r^3}$$

Soit :

$$\frac{a^3}{c^3} = \frac{3}{2}\frac{\tau(1+\nu)}{E\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_a} \qquad [10]$$

Le second membre de cette relation peut être calculé si l'on connaît les valeurs des différents termes. Dans le cas de l'uranium, on a :

— ν : coefficient de Poisson de la phase α, égal à 0,25 (37) (38).

— E : module d'Young de cette phase, égal à $108 \cdot 10^3$ N/mm^2 (39).

— $(\Delta V/V)_a$: variation relative de volume lors du changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$, égal à $1{,}12 \cdot 10^{-2}$.

— τ : pour la valeur de $r = c$ début de la zone où se produit la déformation plastique, $\tau = \sigma_E$ limite élastique de la phase α à la température du changement de phase soit 24,5 N/mm^2 (40).

On en déduit donc :

$$\frac{a^3}{c^3} = 3{,}8 \cdot 10^{-2} \ll 1$$

Par suite

$$a < c \text{ (en fait } a \simeq \frac{c}{3}$$

Le calcul qui vient d'être fait justifie donc que lors du changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$ l'uranium est le siège d'une déformation plastique irréversible.

CONCLUSION

Nous avons montré l'intérêt d'utiliser la méthode de dilatométrie sous charge qui correspond à un fluage anisotherme grâce à une machine conçue spécialement pour ce type d'essais ; cette méthode peut être complémentaire des méthodes classiques d'étude de la recristallisation des métaux, à savoir : la microdureté, les rayons X, la résistivité et la microscopie électronique ; son avantage certain est de pouvoir suivre en continu le phénomène étudié et nous avons montré que dans le cas de l'uranium électrolytique brut de laminage, aussi bien la méthode de fluage isotherme que la méthode de dilatométrie classique sans charge, ne permettaient pas de révéler nettement les différentes étapes du processus de la recristallisation.

Ce processus se décompose en trois étapes qui se traduisent sur les courbes de dilatométrie sous charge enregistrées par une modification de la vitesse d'allongement :

— première étape, entre 200 et 400 °C, on constate que l'uranium présente une accélération de la vitesse d'allongement qui est concomittante de l'existence d'une structure double : matrice restaurée et grains de 3 μ ;

— deuxième étape, de 400 à 500 °C on observe une nette diminution de la vitesse d'allongement, dans ce domaine, la structure est recristallisée de façon uniforme à grain de dimension moyenne égale à 15 μ, le passage de la première étape à la deuxième s'accompagnant d'un changement de texture important ;

— enfin, la troisième étape au-delà de 500 °C et jusqu'à une température proche de celle du changement de phase, on note à nouveau une réaccélération de la vitesse de déformation avec grossissement progressif de la taille moyenne du grain qui atteint 35 μ environ.

Enfin, des essais sans charge appliquée ont montré que le passage de l'état écroui à l'état recristallisé procède par les mêmes étapes que les essais sous charge.

Dans une deuxième série d'expériences relatives au changement de phase sous charge de l'uranium de pureté nucléaire courante, nous avons dégagé les principaux résultats suivants :

— pour des charges supérieures à 6,35 N/mm², l'uranium ne forme plus de gros cristaux mais reste polycristallin ;

— une charge élevée permet de détecter plus tôt l'apparition des premiers germes de phase α plus ductiles d'où une élévation apparente de la température du changement de phase $\beta \rightarrow \alpha$;

— les différents comportements dilatométriques de changement de phase sans charge peuvent se justifier en envisageant un modèle simple qui tient compte de la variation de la maille et du fluage sous charge des nouveaux germes de phase α naissants ;

— enfin en reprenant un modèle émis par Jong et Rathenau, nous avons montré par un calcul théorique que l'uranium, lors du changement de phase $\alpha \rightarrow \beta$ est le siège d'une déformation plastique irréversible contrairement à la plupart des métaux usuels.

Remerciements

Cette étude a été réalisée dans le cadre d'un contrat de recherche confié par le Commissariat à l'Energie Atomique au Centre de Recherches Métallurgiques de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.

Nous remercions M. Cabane, chef du Département de Métallurgie du C.E.N. de Saclay d'en avoir autorisé la publication.

Nous tenons également à remercier Mademoiselle Quesne pour l'aide qu'elle nous a apportée par sa participation à ce travail.

DISCUSSION

M. Dimitrov (C.E.C.M. - Vitry). — Au cours de la recristallisation, il peut se produire un changement de texture de l'uranium. Ce changement conduit à une modification du coefficient moyen de dilatation ; c'est-à-dire à un changement de pente de la courbe allongement-température. Pouvez-vous séparer cet effet de fluage proprement dit ?

M. Collot. — Il y a effectivement un changement de texture sensible au cours de la recristallisation de l'uranium. Notamment Jayne, Cizeron et P. Lacombe (9) ont obtenu pour des recuits isochrones de 4 h à des températures comprises entre la température ambiante et 650 °C sur de l'uranium électrolytique laminé de

$$\frac{e_i - e_F}{e_i} = 80\ \%$$

un changement d'aspect des figures de pôles pour une température de 400 °C correspondant au début de la ponctuation des diagrammes de Debye-Scherrer et en micrographie à l'apparition d'une structure recristallisée à grains fin de $\varnothing$ 10 μ homogène. Cette température de 400 °C coïncide précisément avec le changement de pente de nos courbes de fluage anisotherme sous charge constante.

D'autre part, il est possible de séparer les effets du fluage de ceux dus à une modification du coefficient moyen de dilatation ; il suffit pour cela de déduire de la courbe enregistrée par dilatométrie sous charge, la courbe dilatométrique obtenue sur un échantillon identique sans appliquer de charge (voir fig. 3, 11 et 13). Après cette correction, les trois étapes mises en évidence sont encore bien visibles. Par suite, le changement de texture introduit bien une variation du coefficient de dilatation ; mais cette dernière est bien plus faible que celle résultant de l'accélération du fluage liée à une nouvelle morphologie structurale engendrée parallèlement par le changement de texture.

Il semble donc que l'existence de la structure mixte soit directement responsable de la superductilité enregistrée ; il reste bien entendu à préciser si cette superductibilité est due à un effet de la recristallisation qui progresse en même temps que la température croît, ou si la structure mixte obtenue est intrinsèquement superductile dans un état statique à température constante.

M. Delorme (I.N.S.A. - Villeurbanne). — Une telle plasticité de transformation apparaît dans des alliages très différents et lors de transformations d'un autre type (transformation martensitique par exemple). Avez-vous une idée du mécanisme physique (mouvement de défauts) qui conditionne une telle plasticité de transformation ?

M. Collot. — Nous n'avons fait aucune hypothèse sur les mécanismes physiques qui conditionnent la ductilité observée lors du changement de phase, mais il est probable que les mécanismes intervenant dans ce cas sont différents de ceux qui entrent en jeu lors d'une transformation martensitique effectuée sous charge. Tout d'abord, nous n'avons pas observé pour la contrainte, de seuil, en dessous duquel il n'y a aucune déformation superductile au changement de phase, tandis qu'une contrainte minimale est nécessaire pour augmenter l'expansion liée à la transformation martensitique.

En effet, L. F. Porter et P. C. Rosenthal (26) ont émis l'hypothèse que ce seuil est lié à la tension nécessaire pour désancrer les dislocations et former des empilements aux joints de grains, ce qui crée finalement des concentrations de contraintes ; dans le cas de la transformation martensitique, ces auteurs ont trouvé un seuil de 6,867 N/mm², alors que dans le cas de la transformation α/β de l'uranium, nous avons observé une déformation supplémentaire appréciable dès que la contrainte dépasse 1 N/mm².

De plus, dans notre cas, où la température du changement de phase est assez élevée ($T_{\alpha\beta} = 0{,}77\ T_F°K$, $T_F°K$ = température de fusion théorique de la phase α) il peut intervenir des mécanismes différents de ceux mis en jeu à basse température où les processus de diffusion sont inexistants.

En ce qui concerne l'uranium, il y a lieu de distinguer entre la transformation intervenant au chauffage et celle qui s'opère au refroidissement. Dans le premier cas, les germes β qui apparaissent avec $\Delta V/V > 0$ sont bridés par la matrice α environnante, donc sont mis en compression (ce qui pourrait éventuellement favoriser la formation d'interstitiels dans cette phase β) ; les contraintes de compression se répercutent à assez grande distance dans la phase α et s'ajoutent aux contraintes externes appliquées pour favoriser le fluage de la phase α encore non transformée.

Par contre, dans le cas de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$, les germes de α qui se forment avec $\Delta V/V < 0$ sont mis en tension du fait du bridage de la matrice β environnante : ceci favorise donc la création au sein de la phase α de lacunes qui facilitent le déplacement des dislocations sous l'action de la contrainte externe appliquée et justifie qu'on observe également un fluage ; toutefois, ce dernier est moins important que dans le premier cas du fait que la phase α ductile ne constitue pas la matrice.

Rappelons que ce phénomène de formation de lacunes a d'ailleurs été prouvé par l'observation de pores de dimensions microscopiques (résultant de leur condensation) lorsque des échantillons de fer ou d'uranium sont systématiquement cyclés de part et d'autre des points de transformation allotropique (G. Cizeron et P. Lacombe, *C. R. Acad. Sci. Paris,* **243** (1er octobre 1956) (951-953).

Pour ce qui est de la méthode expérimentale qui peut être mise en œuvre pour de telles études, il est de fait que des essais de torsion ou même de compression, peuvent être avantageusement utilisés. Les expériences de torsion angulaire sous différents moments de torsion et sous charge uniaxiale très faible (2 N/mm²), permettent en tout cas d'éviter de superposer le phénomène de variation dimensionnelle dans le sens de la contrainte appliquée. Ainsi, M. de Jong et G. W. Rathenau (22), ont montré que les expériences effectuées sur des fils par torsion et par traction conduisaient à des résultats analogues.

De même, Clinard et Sherby (18) ont effectué des expériences similaires sur des éprouvettes cylindriques.

BIBLIOGRAPHIE

(1) J. Collot, G. Cizeron. — *Mém. Sci. Rev. Mét.*, **65,** n° 7-8, (1968), 549-565.

(2) G. Clottes, J. C. Jousset et J. Leteurtre. — *J. Mat. Nucl.*, **12,** n° 3 (1964).

(3) G. Jayne. — Thèse, Paris, 1968.

(4) G. Ferran, G. Cizeron. — *C. R. Acad. Sc. Paris,* **266** (6 mai 1968), série C, 1419-1422.

(5) P. Poeydomenge. — Thèse, Paris, 1963.

(6) P. Poeydomenge, G. Cizeron, P. Lacombe. — 6e Colloque de Métallurgie, C.E.A., Saclay (juillet 1962).

(7) G. Clottes. — Thèse, Paris (1963).

(8) G. Clottes, J. P. Mustellier. — 6e Colloque de Métallurgie, C.E.A., Saclay (juillet 1962).

(9) G. Jayne, G. Cizeron et P. Lacombe. — *Mém. Sci. Rev. Mét.*, **64,** n° 1 (1967), 66-76.

(10 R. C. Gifkins. — *J. of the Inst. of Met.*, **87,** n° 59 (1958), 255-261.

(11) N. N. A. De Libanati et S. V. De Tanis. — *J. of Nuclear Materials,* **15,** n° 3 (1965), 153-163.

(12) N. N. A. De Libanati et S. V. De Tanis. — *C. R. Acad. Sc. Paris,* **255** (5 novembre 1962), 2435-2437.

(13) N. N. A. De Libanati, D. Calais et P. Lacombe. — *J. Mat. Nucl.*, **10** (1963), 23.

(14) R. W. Cahn. — *Acta Met.*, **1** (janv. 1953), 49 à 70.

(15) G. Cabane et J. Petit. — *Rev. Mét.*, **51,** n° 9 (1954), 603-613.

(16) G. Cabane. — Thèse, Paris, 1954.

(17) H. Bibring, F. Sebilleau. — *C. R. Acad. Sc. Paris* (11 mars 1957), 1496-1499.

(18) F. W. Clinard and O. D. Sherby. — *Acta. Met.*, **22** (août 1964), 911-919.

(19) M. De Jong, G. W. Rathenau. — *Acta Met.*, **5** (1957), 679-680.

(20) M. De Jong, G. W. Rathenau. — *Nature* (17 mai 1958), 1396-1397.

(21) M. De Jong and G. W. Rathenau. — *Acta Met.*, **7** (avril 1959), 246-253.

(22) M. De Jong and G. W. Rathenau. — *Acta Met.*, **9** (août 1961), 714-720.

(23) M. De Jong and G. W. Rathenau. — *Acta Met.*, **9** (septembre 1961), 889-892.

(24) A. A. Presnyakov et G. V. Starikova. — *Itv. Akad. Nank. SSSR, otd d Tckh.*, n° 1 (Nank 1959), 75 ; (1960), 127.

(25) D. Delschlagel et V. Weiss. — *Trans. A.S.M.*, **59** (1966), 143-154.

(26) L. F. Porter, P. C. Rosenthal. — *Acta Met.*, **7** (juillet 1959), 504-514.

(27) D. Oelschlagel et V. Weiss. — *Trans. A.S.M.*, **59** (1966), 143-154.

(28) S. A. Kulin, Morris Cohen, B. L. Averbach. — *Trans. AIME, J. of Metals* (juin 1952), 661-668.

(29) A. Chaudhuri, H. Mc I. Clark, C. M. Wayman. — *Acta Met.*, **17** (June 1969), 735-744.

(30) W. A. Backofen, I. R. Turner et D. M. Avery. — *Transactions of the A.S.M.* (19..), 980-990.

(31) C. M. Packe, R. H. Johnson et O. D. Sherby. — *Transactions of the Metallurgical Society of AIME,* **242** (décembre 1968), 2485-2489.

(32) R. H. Johnson, C. M. Packer, L. Anderson, O. D. Sherby. — *Phil. Mag.*, **18,** n° 156 (décembre 1968), 1309-1314.

(33) S. N. Buckley, A. G. Harding, M. B. Waldran. — *J. of the Inst. of Met.*, **87,** (1958-59), 150-154.

(34) R. W. Cahn and Mrs H. Tomlinson. — *J. of Nuclear Mat.*, **2,** n° 1 (1960), 88-89.

(35) P. Chiotti, H. H. Klepfer et P. W. White. — *Trans. A.S.M.* (1959).

(36) W. J. Chubb. — *Metals,* **7** (1955), 189.

(37) M. B. Reynolds. — *Trans. A.S.M.*, **45** (1953), 851.

(38) H. L. Laquer, W. E. Mc Gee et M. F. Kilpatrick. — *Trans. A.S.M.*, **42** (1950), 771.

(39) J. Bernard. — Communication au Congrès de Métallurgie, Paris, oct. 1956.

(40) B. Jaoul. — Etude de la plasticité et application aux métaux, Paris (Dunod), 513.

IMP. LOUIS-JEAN 05 GAP